



Conjugaison de phase et nouvelle méthode d'excitation d'ondes de surface

Jean-Michel Nunzi

► To cite this version:

Jean-Michel Nunzi. Conjugaison de phase et nouvelle méthode d'excitation d'ondes de surface. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1984. Français. NNT: . tel-00371972

HAL Id: tel-00371972

<https://theses.hal.science/tel-00371972>

Submitted on 31 Mar 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE présentée
pour l'obtention
du
DIPLOME DE DOCTEUR DE 3ÈME CYCLE
à
L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE
- Paris VI -

Jean-Michel NUNZI

CONJUGAISON DE PHASE ET NOUVELLE METHODE D'EXCITATION
D'ONDES DE SURFACE

soutenue le 28 mai 1984 devant la commission composée de :

Monsieur S. BRATOS	Président
Monsieur C. FLYTZANIS	Examineur
Monsieur J.P. HUIGNARD	Examineur
Monsieur J. MESSIER	Examineur
Monsieur D. RICARD	Examineur

SUJET : Conjugaison de phase et nouvelle méthode d'excitation d'ondes de surface.

RESUME :

L'optique non linéaire est un puissant moyen d'investigation des interfaces. Nous nous plaçons dans la configuration de Kretschmann pour réaliser de nouvelles expériences en régime picoseconde.

On décrit l'observation de conjugaison de phase dans deux configurations différentes : l'une dans laquelle toutes les ondes sont des plasmons de surface et l'autre dans laquelle les pompes sont des plasmons tandis que la sonde est une onde de volume. Ici, l'essentiel des processus non linéaires est d'origine thermique.

Dans une expérience analogue, nous réalisons le couplage d'une onde de volume au plasmon de surface correspondant par l'intermédiaire d'un réseau induit. A cette occasion, nous mettons en évidence l'excitation d'ondes acoustiques de surface.

MOTS CLES :

Surfaces d'argent, ondes et plasmons de surface, optique non linéaire, conjugaison de phase, diffusion Rayleigh forcée, ondes acoustiques de surface.

Ce travail a été réalisé au laboratoire d'Optique Quantique du C.N.R.S. Je ne saurais trop en remercier le Directeur, Monsieur C. Flytzanis pour son accueil et sa confiance.

Daniel Ricard a assuré la direction de mon travail ; je lui suis très sincèrement reconnaissant de l'attention permanente avec laquelle il m'a guidé et encouragé. Je tiens à associer à ces remerciements tous les membres du laboratoire pour l'assistance, tant technique que scientifique qu'ils m'ont si généreusement offerte durant l'élaboration de cette thèse. Je remercie particulièrement Messieurs J. Chesnoy et K. Rustagi pour les nombreuses et enrichissantes discussions que nous avons eues ensemble.

Je ne saurais oublier tous les gens qui m'ont aidé, d'autre part, lors des différents problèmes que j'ai eu à résoudre.

J'adresse enfin tous mes remerciements à Mesdames Françoise Marbot et Michèle Schmitt pour la dactylographie ainsi qu'à Messieurs Marcel Bierry et Dominique Clément pour les dessins de cette thèse.

CONTENTS

1) Le laser

a) Oscillateur

b) Amplificateur

c) Amplificateur

d) Intégration de la lumière du laser

2) Les surfaces diélectriques

a) Préparation

b) Montage du système

c) Courbes de réflectivité

TABLE DES MATIERES

	pages
<u>INTRODUCTION</u>	1
Références de l'introduction	4
<u>CHAPITRE I : GENERALITES SUR LES PLASMONS DE SURFACE</u>	6
1) <u>Les Plasmons</u>	
a) Plasma d'électrons libres de l'Argent	7
b) Polaritons de Plasma	8
2) <u>Les Plasmons de surface</u>	
a) Définition	11
b) Méthodes d'excitation optiques	16
c) Configuration de Kretschmann	18
3) <u>Interactions de plasmons de surface en ATR</u>	
a) Interactions non linéaires	26
b) Interactions avec un réseau	32
Références du chapitre I.	36
<u>CHAPITRE II : CONFIGURATION EXPERIMENTALE</u>	39
1) <u>La source Laser</u>	
a) Oscillateur	40
b) Découpage	42
c) Amplificateur	43
d) Utilisation de la lumière du Laser	45
2) <u>Les surfaces d'argent</u>	
a) Préparation	48
b) Montage du prisme	49
c) Courbes de réflectivité	49

3) <u>Plasmons de surface de haute énergie</u>	
a) Changements de réflectivité	54
b) Interprétation	60
Références du chapitre II.	67

CHAPITRE III : CONJUGAISON DE PHASE D'ONDES DE SURFACES 70

1) <u>Introduction</u>	71
2) <u>Expériences</u>	
a) Montage expérimental	77
b) Interface argent-air	79
c) Interface argent-éthanol	80
d) Conjugaison d'une onde de volume	84
3) <u>Interprétation</u>	
a) Diffusion thermique	87
b) Rendement de conjugaison	90
Références du chapitre III.	94

CHAPITRE IV : COUPLAGE NON LINEAIRE DE PLASMONS DE SURFACE 96

1) <u>Introduction</u>	97
2) <u>Expériences</u>	
a) Dispositif expérimental	99
b) Dépendance temporelle	101
c) Dépendance angulaire	103
3) <u>Discussion</u>	
a) Efficacité du couplage	107
b) Ondes acoustiques de surface	108
Références du chapitre IV.	116

ges
54
60
67
70
71
77
79
80
84
87
90
94
96
97
99
101
103
107
108
116

CONCLUSION

118

ANNEXE A

a) Temps de collision des électrons dans l'argent 120

b) Variations thermiques de la constante diélectrique 121

ANNEXE B

a) Champ du plasmon de surface dans le métal 123

b) Champ d'une onde de volume évanescence dans le métal. 124

c) Champ rayonné dans le diélectrique par une polarisation source du métal. 125

ANNEXE C

Plasmons de surface faiblement non-linéaires. 126

Références des annexes. 129

-§-§-§-§-

INTRODUCTION

La physique des surfaces et des interfaces est un domaine pour lequel l'activité de la communauté scientifique se justifie d'une part, par un grand intérêt théorique pour les systèmes à deux dimensions^(1,2), et d'autre part, par le nombre important de ses applications pratiques. Ainsi, on la retrouve dans des technologies d'actualité telles que : l'électrochimie, l'énergétique solaire, l'extraction pétrolière ou encore, l'électronique et l'optique intégrées⁽³⁾.

En plus des méthodes classiques d'étude de la matière^(4,5) (diffraction de rayons X, d'électrons, d'atomes ou d'ions, microscopies spectroscopie de photoélectrons, spectroscopie Auger, etc...) il y a, pour l'étude des surfaces, des méthodes optiques spécifiques telles que l'ellipsométrie⁽⁶⁾ ou la diffusion Raman exaltée⁽⁷⁾. Il faut noter que dans ces domaines, l'utilisation des lasers s'est banalisée conduisant à plus de diversité dans l'investigation des interfaces⁽⁸⁾. La propagation d'ondes électromagnétiques de surface⁽⁹⁾ permet, quant à elle, d'étudier des systèmes tels que les molécules adsorbées, les couches minces, les rugosités ou les transitions de phase⁽¹⁰⁾. Dans la plupart des cas, seuls les effets linéaires ont été utilisés.

Depuis la première observation de génération d'harmonique 2 par Franken et al. en 1961⁽¹¹⁾, l'optique non linéaire s'est érigée en discipline à part entière, l'immense majorité des travaux ayant porté sur l'interaction en volume^(12,13). Cependant, depuis l'expérience de génération d'harmonique 2, avec des plasmons de surface par Simon et al. en 1974⁽¹⁴⁾, l'optique non linéaire des

surfaces connaît un grand essor. Elle a permis, entre autres, à De MARTINI et al. d'exciter des polaritons de phonon⁽¹⁵⁾ et des polaritons d'exciton⁽¹⁶⁾ par des processus du second ordre. En 1979, C.K. Chen et al.⁽¹⁷⁾ ont adapté aux surfaces la technique de diffusion Raman anti-Stokes cohérente (CARS). De nombreuses autres expériences ont été réalisées depuis et un grand nombre d'effets prédits^(18,19).

Ici, nous présentons les premières expériences d'holographie en temps réel (conjugaison de phase) en surface. Nous présentons aussi une nouvelle méthode d'excitation d'ondes de surface par diffraction sur un réseau induit (diffusion Rayleigh forcée).

Le chapitre I est consacré à des généralités sur les plasmons de surface : depuis le substrat qui est l'argent, en passant par les méthodes classiques d'excitation, jusqu'aux interactions à caractère non linéaire.

Nous avons consacré le chapitre II au dispositif expérimental ainsi qu'à la mise en évidence d'un effet non-linéaire thermique important dans l'Argent.

Dans le chapitre III, nous mettons en évidence la possibilité de faire de la conjugaison de phase avec des ondes de surface. L'accent est mis sur les particularités de cet effet à deux dimensions et sur son intérêt au niveau de l'optique intégrée.

Enfin, au chapitre IV, est décrite l'expérience d'excitation de plasmons par réseau induit. On montre son application dans l'étude des ondes acoustiques de surface.

Il faut remarquer que tout au long de ce travail, nous avons traité de plasmons de surface "ordinaires". Récemment, a été

prédite⁽²⁰⁾ et observée^(21,22), l'existence de plasmons de surface à "longue portée". Leur intérêt en optique non linéaire a tout de suite été reconnu⁽²⁰⁾ et expérimenté par la génération de second harmonique⁽²³⁾. En conclusion, nous discutons ce que nous aurions pu attendre de telles ondes pour notre travail.

Il ressort de cette étude que l'effet joule présent lors de l'excitation de plasmons de surface peut être mis à profit dans la réalisation et l'investigation de nouveaux dispositifs optiques à caractère non linéaire.

REFERENCES DE L'INTRODUCTION

- 1) G.A. SOMORJAI :
"Principles of surface chemistry", Prentice Hall, (72)
- 2) G.A. SOMORJAI :
"Chemistry in two dimensions : Surfaces", Cornell University Press, (81).
- 3) Colloque "Horizons de l'optique 83", Bordeaux, 21-23 Novembre 83.
- 4) H. IBACH :
"Electron spectroscopy for surface analysis", Springer Verlag, (77)
- 5) R.F. WILLIS (ed.) :
"Vibrational spectroscopy of adsorbates", Springer Verlag, (80).
- 6) Conférence internationale sur "l'Ellipsométrie et autres méthodes optiques pour l'analyse des surfaces et films minces", Paris, 7-10 Juin
J. Physique 44, C.10 (83)
- 7) R.K. CHANG et T.E. FURTAK (eds) :
"Surface enhanced Raman Scattering", Plenum Press, (82).
- 8) R.R. AUSSENEGG, A. LEITNER, M.E. LIPPITSCH (eds) :
"Surface Studies with Lasers", Springer-Verlag (83)
- 9) A.D. BOARDMANN (ed) :
"Electromagnetic Surface Modes", J. Willey et Sons (82)
- 10) VM. AGRANOVICH et D.L. MILLS (eds) :
"Surface Polaritons", North Holland, (82)
- 11) P.A. FRANKEN, A.E. HILL, C.W. PETERS et G. WEINREICH :
Phys.rev.lett., 7, 118, (61)
- 12) Y.R. SHEN :
Rev.Mod. Phys., 48, 1, (76)

- 13) N. BLOEMBERGEN :
Rev.Mod.Phys., 54, 685, (82).
- 14) H.J. SIMON, D.E. MITCHELL et J.G. WATSON :
Phys.Rev.lett., 33, 1531, (74).
- 15) F.DE MARTINI, G. GIULIANI, P. MATALONI, E. PALANGE, et Y.R. SHEN :
Phys.rev.lett., 37, 440 (76)
- 16) F. DEMARTINI, M. COLOCCI, S.E. KOHN et Y.R. SHEN :
Phys.rev.lett., 38, 1223, (77)
- 17) C.K. CHEN, A.R.B. de CASTRO, Y.R. SHEN et F. de MARTINI :
Phys.rev.lett., 43, 946, (79)
- 18) T.F. HEINZ, H.W. TOM et Y.R. SHEN :
Laser Focus, 19, 101, (83)
- 19) D. RICARD :
Ann.Physique, 8, 273, (83)
- 20) D. SARID : Phys.rev.lett., 47, 1927, (81)
- 21) J.C. QUAIL, J.G. RAKO, H.J. SIMON :
Opt.lett. 8, 377, (83)
- 22) A.E. CRAIG, G.A. OLSON, D. SARID :
Opt.lett., 8, 380, (83)
- 23° J.C. QUAIL, J.G. RAKO, H.J. SIMON et R.T. DECK :
Phys.rev.lett, 50, 1987, (83).

CHAPITRE I

GENERALITES SUR LES PLASMONS DE SURFACE

1 - LES PLASMONS

2 - LES PLASMONS DE SURFACE

3 - INTERACTIONS DE PLASMONS DE SURFACE EN ATR.

1) - LES PLASMONSa) Plasma d'électrons libres de l'argent.

Les propriétés diélectriques de l'argent ainsi que des métaux nobles tels que l'or et le cuivre sont principalement dues, pour les fréquences optiques et infrarouges, au gaz d'électrons libres du métal⁽¹⁾. Dans l'argent (Ag), il y a un électron "libre" par atome, ce qui fait une densité de plasma $n = 5,8 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$. La constante diélectrique du plasma se détermine simplement en considérant le mouvement classique d'un électron soumis à l'action d'un champ électrique :

$$\vec{E} = \vec{E} e^{i\vec{k}\vec{x} - i\omega t} + cc^*$$

(c'est le modèle de Drude).

L'équation du mouvement est :

$$m \frac{d\vec{v}}{dt} + \frac{m}{Z} \vec{v} = e \vec{E} \quad (I - 1)$$

\vec{v} étant la vitesse de l'électron, m sa masse effective, e sa charge, Z dit "temps de collision", décrivant phénoménologiquement l'atténuation du mouvement des électrons, dépend de ω et de la température (Annexe A).

Pour un champ électrique continu ($\omega = 0$), Z_d est relié à la conductivité électrique σ_d intervenant dans la loi d'Ohm $\vec{j} = \sigma_d \vec{E}$. On tire $\sigma_d = ne^2 Z_d$ /m de l'équation (I.1) en régime stationnaire.

La solution de (I.1) en régime permanent, pour un champ optique de pulsation ω , est :

* cc pour complexe conjugué.

$$\vec{v} = \frac{i \omega e \vec{E}}{m(\omega^2 + i \omega/\tau)} \quad (\text{I} - 2)$$

d'où la densité de polarisation et la susceptibilité du plasma :

$$\vec{p} = i \frac{ne}{\omega} \vec{v} = \chi(\omega) \vec{E} \quad (\text{I} - 3)$$

et la constante diélectrique du métal

$$\epsilon(\omega) = 1 + 4\pi \chi(\omega) \quad (\text{en c.g.s})$$

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i \omega/\tau} \quad (\text{I} - 4)$$

$\omega_p = (4\pi n e^2/m)^{1/2}$ est appelé fréquence de plasma et vaut 8,97 eV pour l'Argent.

Ce modèle convient assez bien pour décrire la réalité, dans Ag, tant que $\hbar \omega < 3,5$ eV, ce qui correspond à l'absence de transitions interbandes^(2,3). En incluant la force de Lorentz à ce modèle, on peut avoir une idée des non-linéarités d'un métal; cependant, d'autres effets sont à prendre en compte dans la réalité expérimentale⁽⁴⁾.

b) Polaritons de Plasma

On appelle polariton le mode de propagation d'une onde électromagnétique près d'une résonance d'un milieu condensé^(5,6).

Si la résonance est identifiée, le polariton est alors qualifié. S'il s'agit, par exemple, des modes de vibration actifs en infrarouge d'un cristal, on a des polaritons de phonon. Dans notre cas, où il s'agit d'un plasma d'électrons, on a un plasmon-polariton généralement appelé plasmon.

La relation de dispersion des polaritons s'écrit simplement :

$$\vec{k} \times \vec{k} \times \vec{E} + \epsilon(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E} = 0 \quad (I - 5)$$

Il peut donc se propager deux modes de volume (fig.1) :
un mode longitudinal tel que $\epsilon(\omega_L) = 0$

à $\omega_L = \omega_p$ pour un plasmon,

un mode transverse tel que : $\omega_T^2 \epsilon(\omega) - c^2 k^2 = 0$

à $\omega_T = (\omega_p^2 + c^2 k^2)^{1/2}$

pour un plasmon (on a négligé l'amortissement).

Il apparaît une "bande interdite" pour $\omega < \omega_p$, ce qui rend le milieu réfléchissant ($\epsilon < 0$).

Dans le cas où le milieu est limité, il peut, sous certaines conditions, se propager des polaritons liés à l'interface. Ce sont les polaritons de surface⁽⁷⁾. Dans le cas d'un métal ou d'un semi-conducteur dopé, ce sont les plasmons de surface⁽⁸⁾.

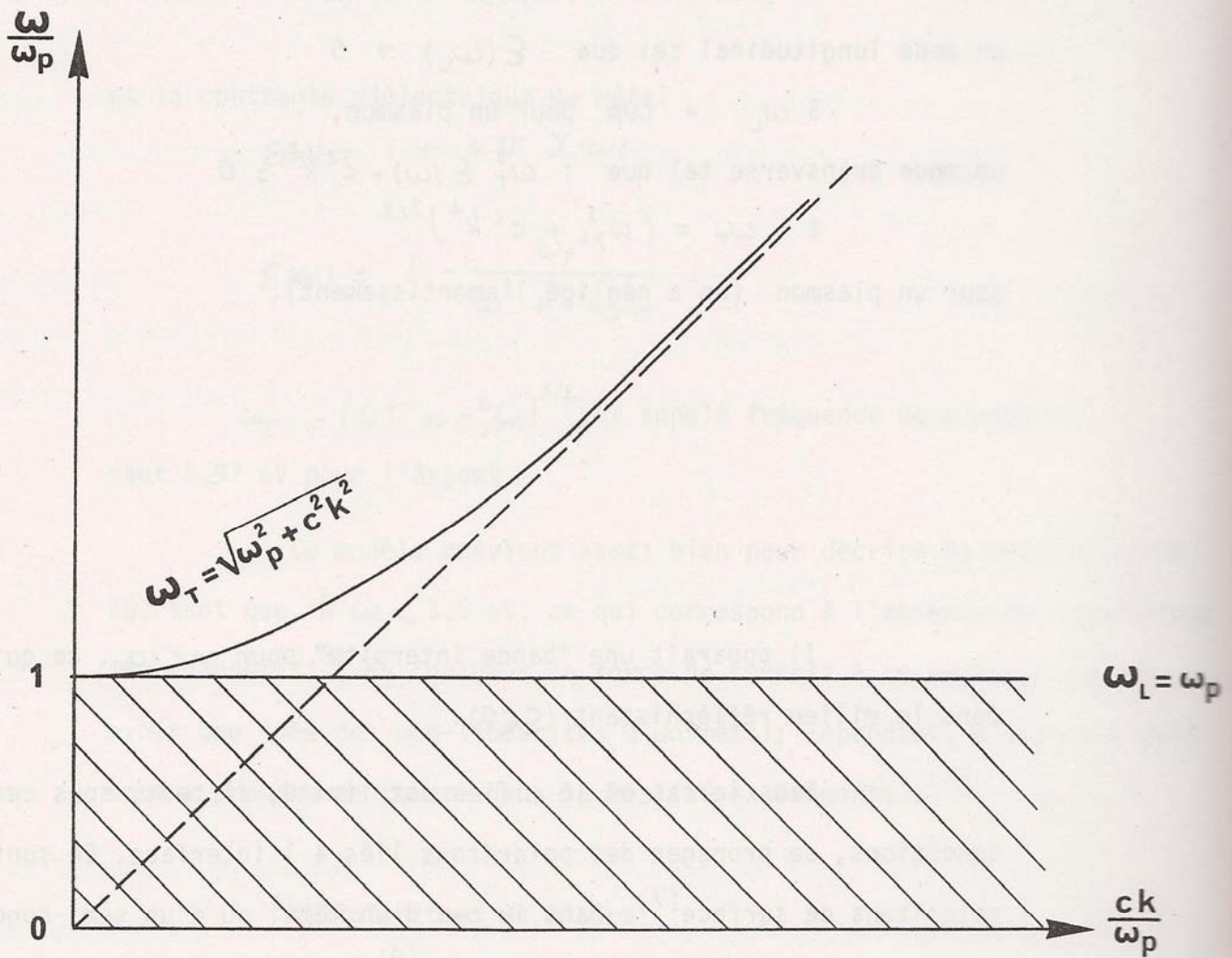


figure 1 : Courbe de dispersion des plasmons de volume montrant :

le mode transverse,
le mode longitudinal,
la bande interdite.

2) - LES PLASMONS DE SURFACE

a) Définition

Considérons deux milieux (1) et (2), de constantes diélectriques ϵ_1 et ϵ_2 , séparés par le plan $z = 0$ (fig. 2). Une onde de surface est une onde transverse magnétique (T.M.), c'est-à-dire dont le champ électrique est parallèle au plan d'incidence (polarisation p), et qui se propage comme une onde guidée à l'interface.

Le champ électrique, solution des équations de Maxwell dans chacun des milieux, peut s'écrire :

$$\vec{E}_a = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -k_x / k_{az} \end{pmatrix} E_{ax} e^{i k_x x + i k_{az} z - i \omega t} + cc \quad (I - 6a)$$

avec $k_x^2 + k_{az}^2 = \epsilon_a \frac{\omega^2}{c^2} \quad (a = 1, 2)$

Appliquant les conditions de continuité à l'interface :

$$\Delta \vec{E} \cdot \hat{x} = 0 \quad \text{et} \quad \Delta \vec{D} \cdot \hat{z} = 0 \quad \text{en } z = 0,$$

on obtient la relation de dispersion :

$$k_x^2 = \frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2} \frac{\omega^2}{c^2} \quad (I - 6b)$$

Supposons que ϵ_1 et ϵ_2 soient réels, la solution recherchée est telle que $k_{1z} = i \alpha_1$ et $k_{2z} = -i \alpha_2$ avec k_x , α_1 et α_2 réels positifs. Dans le cas où $\epsilon_1 > 0$, ça n'est possible que si :

$$\epsilon_2 < 0 \quad \text{et} \quad -\epsilon_2 > \epsilon_1. \quad (I - 7)$$

Le fait que ϵ_2 soit négatif implique la proximité d'une résonance (le milieu 2 est dit "actif"). On a donc bien affaire à un polariton de surface. L'existence de telles ondes a été reconnue par Sommerfeld en 1909⁽⁹⁾.

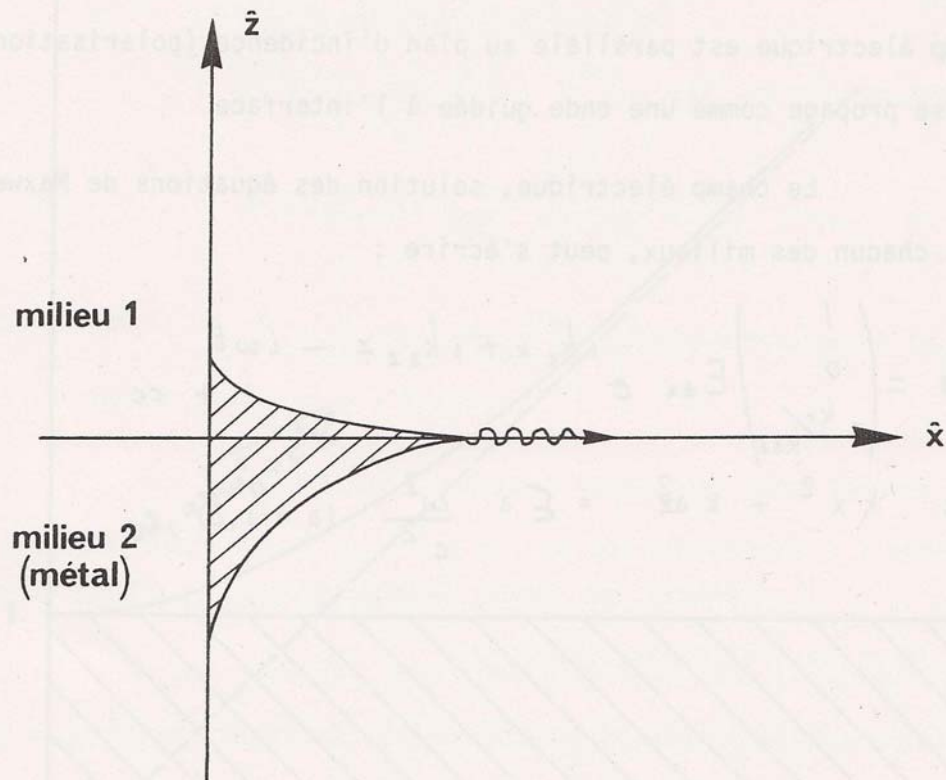


figure 2 : Un polariton de surface est une onde T.M. se propageant à l'interface entre deux milieux et dont l'amplitude décroît exponentiellement de part et d'autre.

Dans le cas des plasmons de surface (P.S.), le milieu actif est un métal (m) et l'autre un diélectrique (d) les conditions (I,7) imposent : $\omega < \omega_p (1 + \epsilon_d)^{-1/2}$

La relation de dispersion des PS est (fig. 3) :

$$k_x^2 = \frac{\epsilon_d (\omega^2 - \omega_p^2)}{(1 + \epsilon_d) \omega^2 - \omega_p^2} \frac{\omega^2}{c^2} \quad (I - 8)$$

On remarque qu'il existe toujours une bande interdite pour :

$$\omega_p > \omega > \omega_p (1 + \epsilon_d)^{-1/2}$$

De même que pour les ondes acoustiques de surface (ondes de Rayleigh) le champ des ondes de surfaces est une combinaison linéaire de modes transverse et longitudinal polarisés dans le plan d'incidence. Cette analogie peut être poussée beaucoup plus loin et donne lieu aux "modèles hydrodynamiques" (10).

On observe les plasmons et les PS en diffusion inélastique d'électrons (12,13). Pour un électron lent ($E \ll mc^2$), k est beaucoup plus grand que pour un photon de même énergie. On observe donc une raie à ω_p pour les plasmons de volume et une raie à $\omega_p/\sqrt{2}$ pour les PS, le milieu (1) étant généralement le vide. La largeur finie de la raie provient de l'amortissement.

Comme le montre la formule (I - 4), ϵ_m est complexe :

$$\epsilon_m = \epsilon'_m + i \epsilon''_m, \text{ conduisant à : } k_x = k'_x + i k''_x \quad (I - 9)$$

le PS a donc une distance de propagation finie $1/k''_x$
et si $\epsilon''_m \ll \epsilon'_m$, ce qui est le cas jusqu'à ~3,5 eV pour Ag (2) :

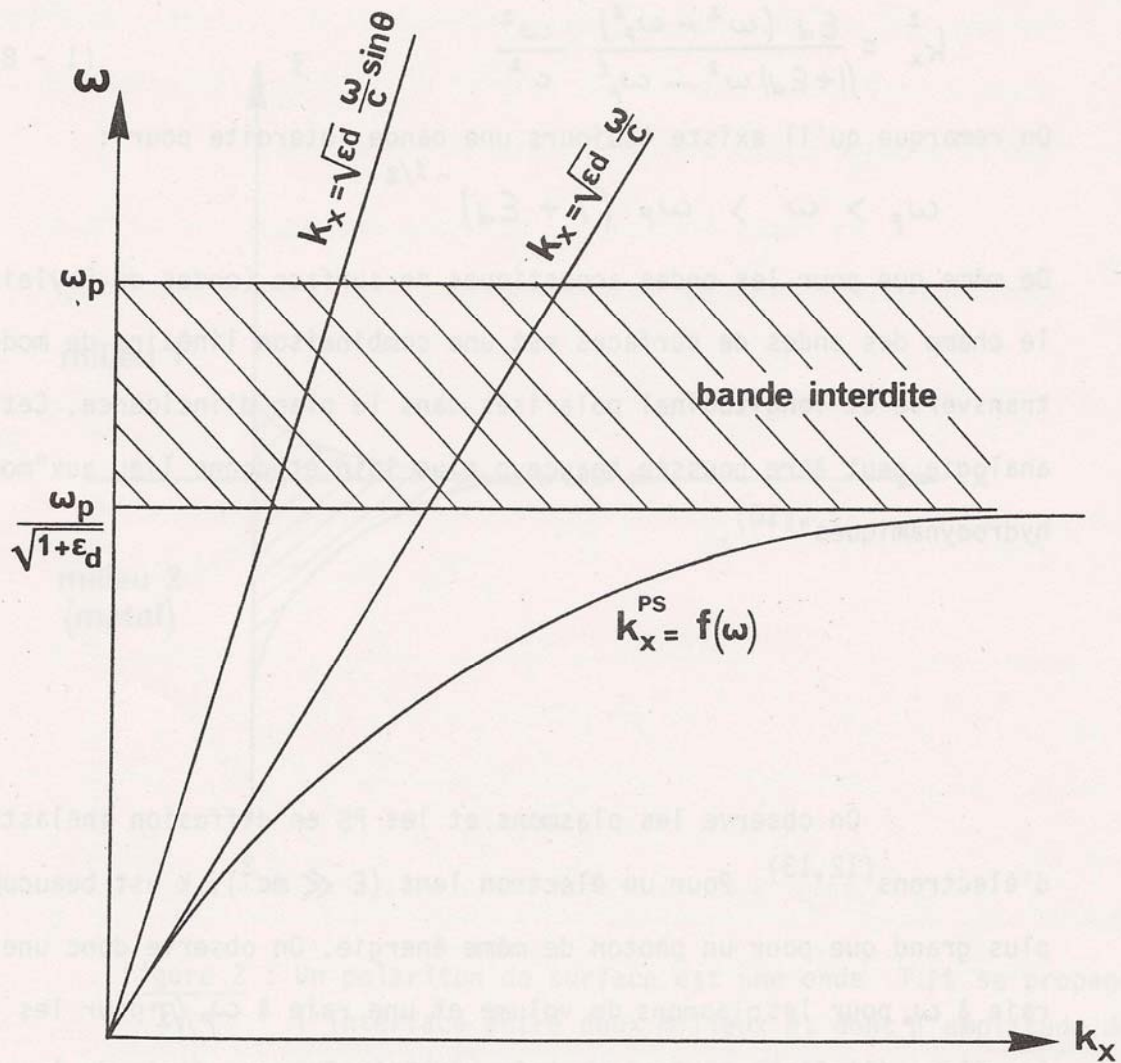


figure 3 : courbe de dispersion du plasmon de surface (PS).

$$k'_x = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_d \epsilon'_m}{\epsilon_d + \epsilon'_m} \right)^{1/2} \quad 15$$

$$k''_x = \frac{1}{2} \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_d \epsilon'_m}{\epsilon_d + \epsilon'_m} \right)^{3/2} \frac{\epsilon''_m}{\epsilon'^2_m} \quad (I-10)$$

On a aussi :

$$\alpha_m = \frac{\omega}{c} \left(\frac{-\epsilon'^2_m}{\epsilon'_m + \epsilon_d} \right)^{1/2}$$

$$\text{et : } \alpha_d = \frac{\omega}{c} \left(\frac{-\epsilon_d^2}{\epsilon'_m + \epsilon_d} \right)^{1/2} \quad (I-11)$$

ce qui fait, pour un interface Ag/air sondé à 6328 Å (laser He-Ne)

$$\epsilon_m = -20 + i \quad (2), \quad \epsilon_d = 1 :$$

$$k'_x = 102. 10^3 \quad \text{cm}^{-1}$$

$$k''_x = 134 \quad \text{cm}^{-1} \quad \left(\frac{1}{k''_x} = 75 \mu\text{m} \right)$$

$$\alpha_m = 456. 10^3 \quad \text{cm}^{-1} \quad \left(\frac{1}{\alpha_m} = 220 \text{ Å} \right)$$

$$\alpha_d = 23. 10^3 \quad \text{cm}^{-1} \quad \left(\frac{1}{\alpha_d} = 4390 \text{ Å} \right)$$

b) - Méthodes d'excitation optique

On ne peut exciter des PS qu'à condition de satisfaire la relation de dispersion $k_x^{PS} = f(\omega)$ (fig. 3).

Une onde de volume de fréquence ω et de vecteur d'onde \vec{k} incidente depuis le milieu (1) sur l'interface est telle que :

$$k_x = \sqrt{\epsilon_d} \frac{\omega}{c} \sin \theta \quad (I - 12)$$

où $\theta = (\widehat{k, z})$.

La droite (I - 12) ne coupant pas la courbe de dispersion (fig. 3), il n'y a pas couplage entre une onde de volume et un PS. Les PS sont "non-radiatifs".

Si on remplace l'interface par un réseau de pas Λ (14,15); la diffraction dans l'ordre P ($P \in \mathbb{Z}$) excite le PS si :

$$k_x'^{PS}(\omega) = P \frac{2\pi}{\Lambda} + \sqrt{\epsilon_d} \frac{\omega}{c} \sin \theta \quad (I - 13)$$

Ainsi, certaines anomalies des réseaux métalliques, les anomalies de Wood⁽¹¹⁾, sont dues aux PS.

Une autre technique est celle des ondes évanescentes proposée par Otto en 1968⁽¹⁶⁾. Elle consiste à ajouter un prisme d'indice $\sqrt{\epsilon_p} = n_p > \sqrt{\epsilon_d}$ à une petite distance de l'interface. Du fait que $\sqrt{\epsilon_p} \frac{\omega}{c} > k_x'^{PS}(\omega)$, il est possible de choisir une incidence dans le prisme de couplage telle que :

$$k_x = \sqrt{\epsilon_p} \frac{\omega}{c} \sin \theta_{ps} = k_x'^{PS} \quad (I - 14)$$

pour exciter un PS. Cette technique est appelée aussi réflexion totale atténuée ou ATR. En effet, le plasmon est excitable quand on est en réflexion totale dans le prisme :

$$\theta_{ps} > \theta_{RT} = \text{Arcsin}(\epsilon_p / \epsilon_d)$$

A l'excitation, $\theta = \theta_{ps}$, il y a chute de réflectivité (fig. 4).

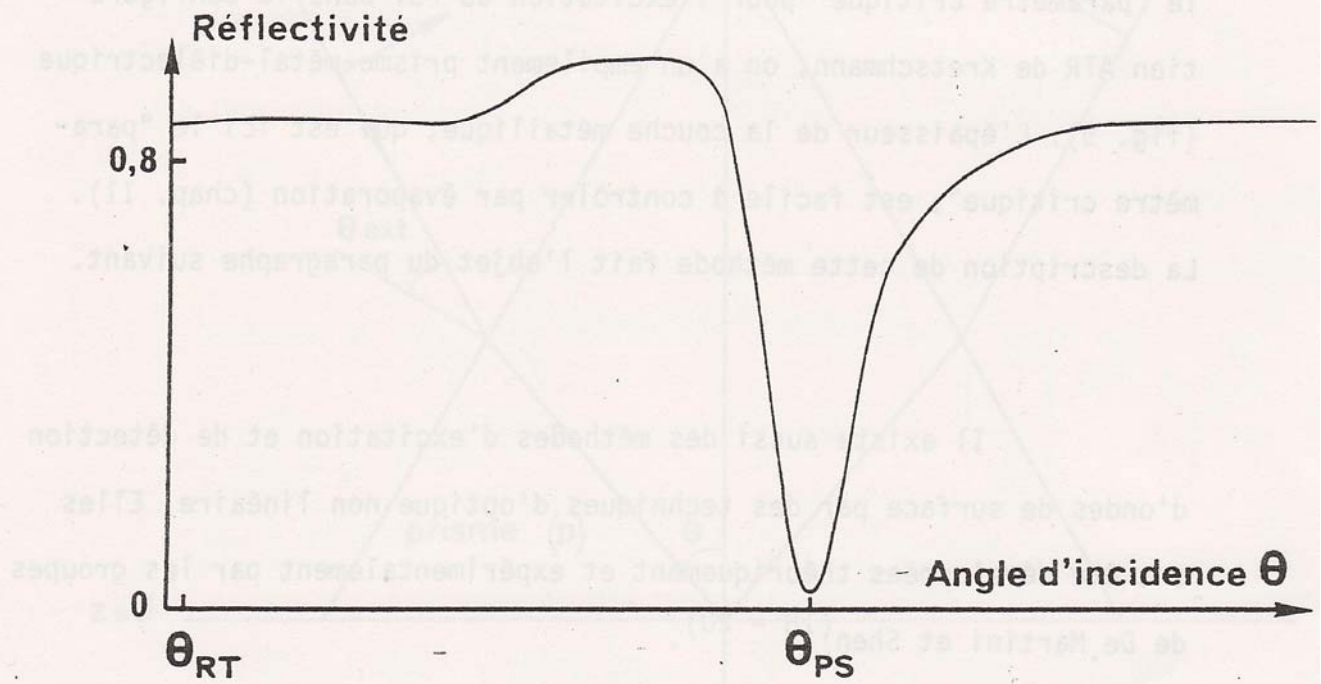


figure 4 : Courbe de réflectivité traduisant l'excitation d'un PS en ATR.

La technique que nous avons utilisée et qui est la plus usitée est une variante de celle de Otto proposée par Kretschmann en 1971⁽¹⁷⁾. En effet, dans la méthode du réseau, c'est la profondeur de modulation et dans la méthode d'Otto c'est l'épaisseur de la couche de diélectrique qui est difficile à contrôler et qui est le "paramètre critique" pour l'excitation du PS. Dans la configuration ATR de Kretschmann, on a un empilement prisme-métal-diélectrique (fig. 5). L'épaisseur de la couche métallique, qui est ici le "paramètre critique", est facile à contrôler par évaporation (chap. II). La description de cette méthode fait l'objet du paragraphe suivant.

Il existe aussi des méthodes d'excitation et de détection d'ondes de surface par des techniques d'optique non linéaire. Elles ont été développées théoriquement et expérimentalement par les groupes de De Martini et Shen^(18 - 20).

c) - Configuration de Kretschmann

La présence du prisme coupleur modifie la relation de dispersion des PS qui n'a plus la forme du paragraphe (2 - a) :

$$\epsilon_m k_{dz} - \epsilon_d k_{mz} = 0 \quad (1 - 15)$$

Dans chacun des milieux, on peut écrire les champs vérifiant les équations de Maxwell ainsi :

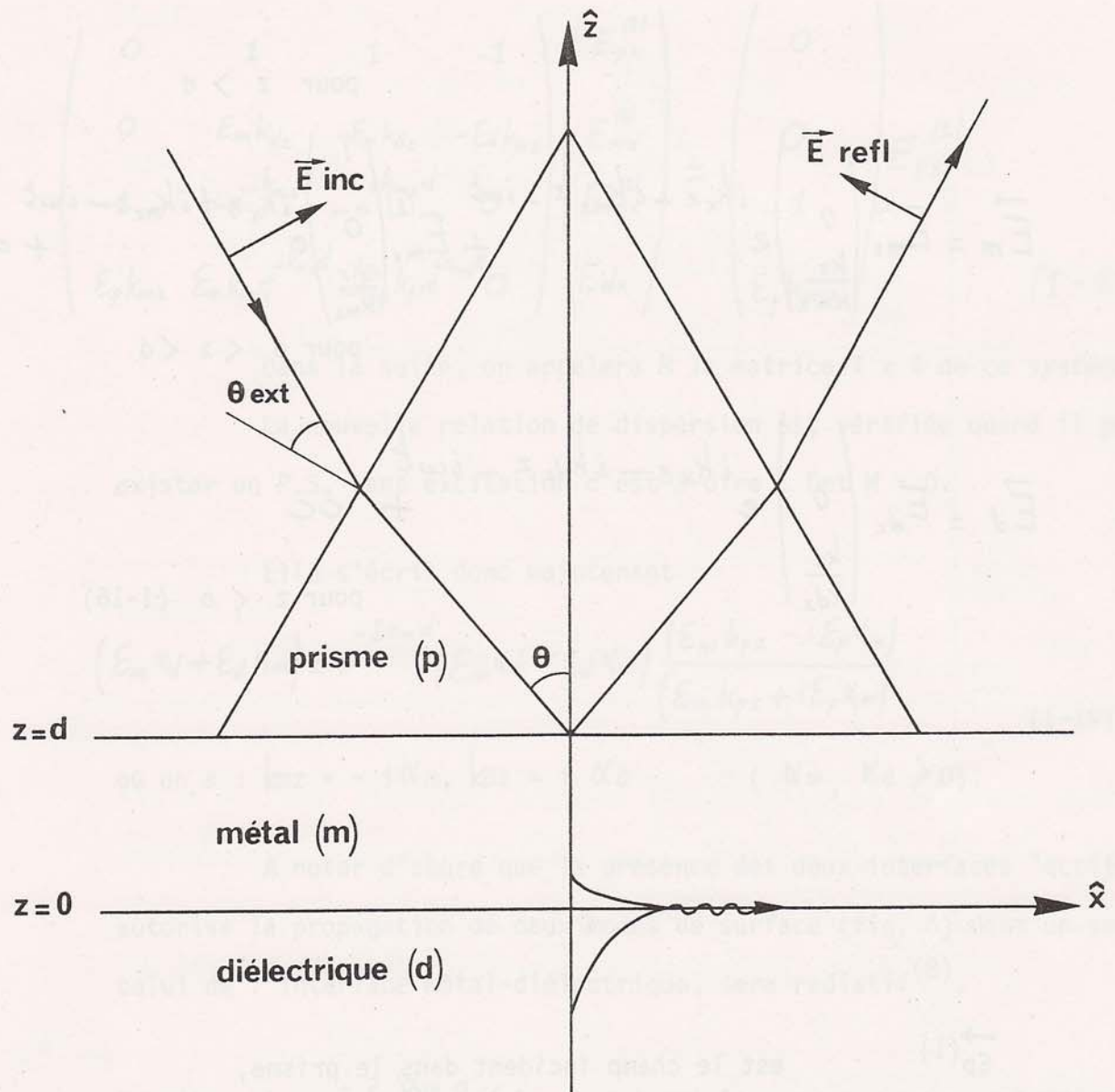


figure 5 : Schéma de principe de la configuration ATR de Kretschmann où l'empilement p - m - d remplace l'empilement p - d - m d'Otto.

$$\vec{E}_p = E_{px}^{(1)} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \frac{k_x}{k_{pz}} \end{pmatrix} e^{ik_x x - ik_{pz}(z-d) - i\omega t} + E_{px}^{(2)} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -\frac{k_x}{k_{pz}} \end{pmatrix} e^{ik_x x + ik_{pz}(z-d) - i\omega t} + cc$$

pour $z > d$

$$\vec{E}_m = E_{mx}^{(1)} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \frac{k_x}{k_{mz}} \end{pmatrix} e^{ik_x x - ik_{mz} z - i\omega t} + E_{mx}^{(2)} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -\frac{k_x}{k_{mz}} \end{pmatrix} e^{ik_x x + ik_{mz} z - i\omega t} + cc$$

pour $0 < z < d$

$$\vec{E}_d = E_{dx} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \frac{k_x}{k_{dz}} \end{pmatrix} e^{ik_x x - ik_{dz} z - i\omega t} + cc$$

pour $z < 0$ (I-16) $\vec{E}_p^{(1)}$

est le champ incident dans le prisme,

 $\vec{E}_p^{(2)}$

le champ réfléchi par l'interface dans le prisme,

 $\vec{E}_m^{(1)}$

est le champ transmis dans le métal et situé près de l'interface Ag - diélectrique (il est évanescent),

 $\vec{E}_m^{(2)}$

est situé près de l'interface Ag - prisme,

 \vec{E}_d

est le champ transmis dans le diélectrique.

Dans chaque milieu ($a = p, m, d$), on a :

$$k_x^2 + k_{az}^2 = \epsilon_a \frac{\omega^2}{c^2}$$

(I - 17)

En appliquant les conditions de continuité en $z = 0$ et $z = d$ pour $\vec{E}_{//}$ et \vec{D}_{\perp} , on arrive à l'équation déterminant les champs :

$$\begin{pmatrix} 0 & 1 & 1 & -1 \\ 0 & \epsilon_m k_{dz} & -\epsilon_m k_{dz} & -\epsilon_d k_{mz} \\ 1 & -e^{-ik_{mz}d} & -e^{ik_{mz}d} & 0 \\ \epsilon_p k_{mz} & \epsilon_m k_{pz} e^{-ik_{mz}d} & -\epsilon_m k_{pz} e^{ik_{mz}d} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{px}^{(2)} \\ E_{mx}^{(1)} \\ E_{mx}^{(2)} \\ E_{dx} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \\ \epsilon_p k_{mz} \end{pmatrix} E_{px}^{(1)} \quad (1-18)$$

Dans la suite, on appellera M la matrice 4×4 de ce système.

La nouvelle relation de dispersion est vérifiée quand il peut exister un P.S. sans excitation c'est-à-dire : $\text{Det } M = 0$.

Elle s'écrit donc maintenant :

$$(\epsilon_m \alpha_d + \epsilon_d \alpha_m) = e^{-2\alpha_m d} (\epsilon_m \alpha_d - \epsilon_d \alpha_m) \frac{(\epsilon_m k_{pz} - i\epsilon_p \alpha_m)}{(\epsilon_m k_{pz} + i\epsilon_p \alpha_m)} \quad (1-19)$$

où on a : $k_{mz} = -i\alpha_m$, $k_{dz} = i\alpha_d$ ($\alpha_m, \alpha_d > 0$).

A noter d'abord que la présence des deux interfaces "actifs" autorise la propagation de deux modes de surface (fig. 6) dont un seul, celui de l'interface métal-diélectrique, sera radiatif⁽⁸⁾.

Ensuite, si : $e^{-2\alpha_m d} \ll 1$, ce qui est le cas pour nous expérimentalement ($\alpha_m^{-1} \sim 200 \text{ \AA}$ et $d \sim 500 \text{ \AA}$), il devient évident, au vu de (I - 19) et (I - 15), que le prisme agit comme une perturbation minime sur la relation de dispersion des PS (I - 6b).

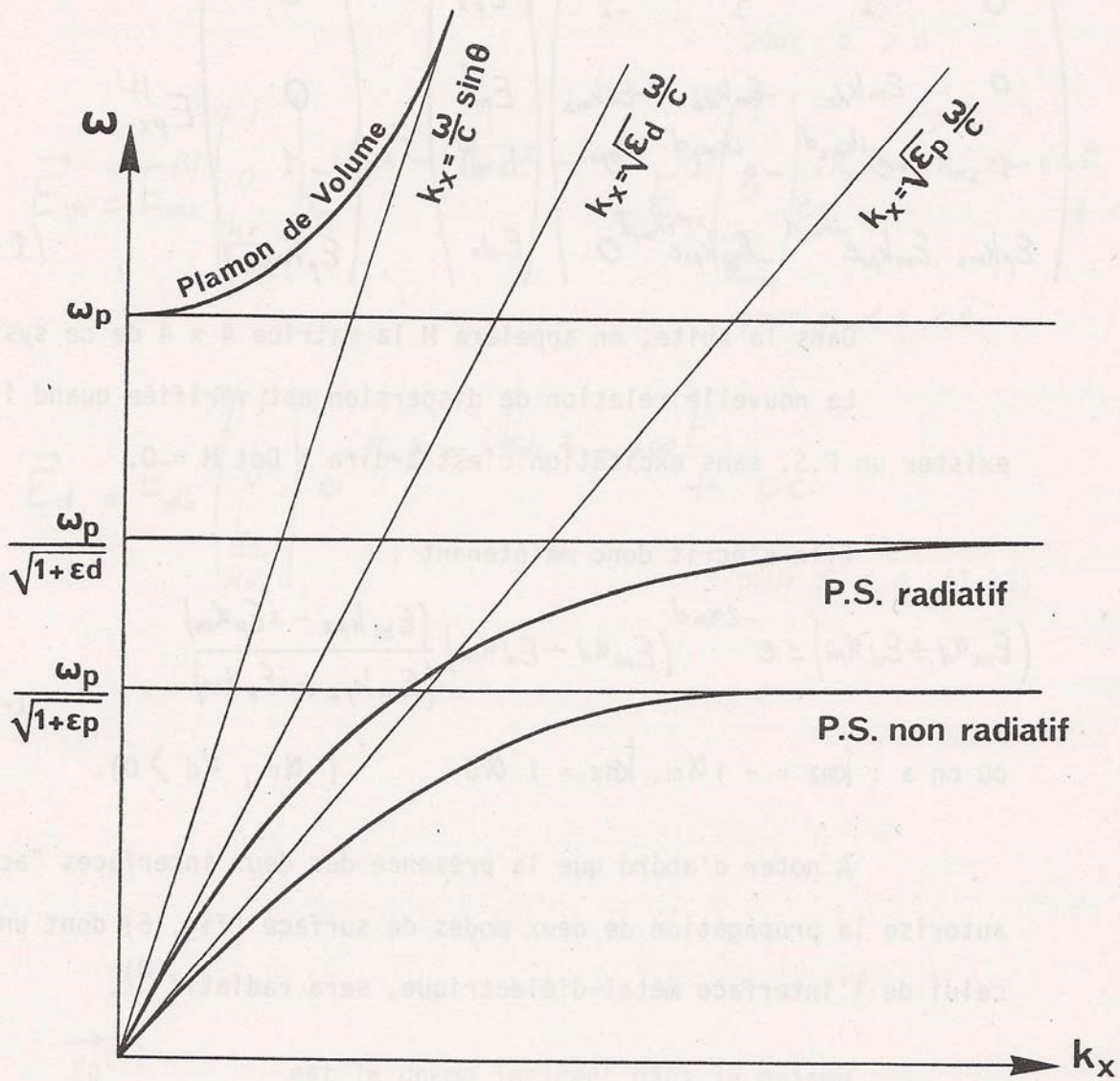


figure 6 : Modes de surface radiatif et non radiatif en ATR.
Et mode de volume dans le métal.

En considérant que $\left| \frac{\epsilon''_m}{\epsilon'_m} \right|$ et $e^{-2\alpha_m d} \ll 1$, on peut développer (I-19) au premier ordre dans ces quantités et écrire (21):

$$k_x^{\text{PS}} = k_{x0} + k_{rr} + i(k_{ii} + k_{ir}) \quad (\text{I-20})$$

$$\begin{aligned} \text{où : } k_{x0} &= \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon'_m \epsilon_d}{\epsilon'_m + \epsilon_d} \right)^{1/2} \\ k_{ii} &= \frac{1}{2} \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon'_m \epsilon_d}{\epsilon'_m + \epsilon_d} \right)^{3/2} \frac{\epsilon''_m}{\epsilon'^2_m} \\ k_{rr} &= \frac{2(\epsilon'_m \alpha_d)^2}{k_{x0}(\epsilon'_m - \epsilon_d)^2} e^{-2\alpha_m d} \operatorname{Re}(r_{pm}) \\ k_{ir} &= \frac{-2(\epsilon'_m \alpha_d)^2}{k_{x0}(\epsilon'_m - \epsilon_d)^2} e^{-2\alpha_m d} \operatorname{Im}(r_{pm}) \end{aligned}$$

$$r_{pm} = \frac{\epsilon_m k_{pz} - \epsilon_p k_{mz}}{\epsilon_m k_{pz} + \epsilon_p k_{mz}} \quad \text{est le coefficient de Fresnel} \quad (22)$$

pour la réflexion d'une onde TM sur l'interface prisme-métal, k_{x0} et k_{ii} sont identiques à k'_x et k''_x de (I-10) et k_{rr} et k_{ir} sont les perturbations dues au couplage. Ce couplage modifie beaucoup k''_x car $k_{ii} \approx k_{ir}$; le PS couplé aux ondes de volume subit maintenant des pertes radiatives (k_{ir}) en plus des pertes intrinsèques (k_{ii}).

Réolvant (I-18), on trouve pour le champ réfléchi dans le prisme :

$$-\frac{E_{px}^{(2)}}{E_{px}^{(1)}} = \frac{(\epsilon_d \alpha_m + \epsilon_m \alpha_d)(\epsilon_m k_{pz} - i\epsilon_p \alpha_m) + e^{-2\alpha_m d}(\epsilon_d \alpha_m - \epsilon_m \alpha_d)(\epsilon_m k_{pz} + i\epsilon_p \alpha_m)}{(\epsilon_d \alpha_m + \epsilon_m \alpha_d)(\epsilon_m k_{pz} + i\epsilon_p \alpha_m) + e^{-2\alpha_m d}(\epsilon_d \alpha_m - \epsilon_m \alpha_d)(\epsilon_m k_{pz} - i\epsilon_p \alpha_m)} \quad (\text{I-21})$$

c'est le carré du module de ce terme qui donne la courbe de réflectivité représentée figure 4.

On trouve aussi le champ "transmis" dans le diélectrique :

$$\frac{E_{dx}}{E_{px}^{(1)}} = \frac{4 i \epsilon_p \epsilon_m \alpha_d \alpha_m e^{-\alpha_m d}}{(\epsilon_d \alpha_m + \epsilon_m \alpha_d) / (\epsilon_m k_{pz} + i \epsilon_p \alpha_m) + e^{-2\alpha_m d} (\epsilon_d \alpha_m - \epsilon_m \alpha_d) / (\epsilon_m k_{pz} - i \epsilon_p \alpha_m)} \quad (I-22)$$

Le dénominateur de cette expression étant résonnant quand on excite un PS, le champ est exalté à l'interface.

En annexe B sont évalués les autres champs, ainsi que leurs composantes.

Considérons le vecteur d'onde de $\vec{E}_p^{(1)}$ en ATR.

Pour $k_x = \sqrt{\epsilon_p} \frac{\omega}{c} \sin \theta \approx k_{x0}$, on peut réécrire la réflectivité $R = \left| \frac{\vec{E}_p^{(r)}}{\vec{E}_p^{(i)}} \right|^2$ tirée de (I-21) ainsi :

$$R = 1 - \frac{4 k_{ii} k_{ir}}{\delta k^2 + (k_{ii} + k_{ir})^2} \quad (I-23)$$

où $\delta k = k_x - (k_{x0} + k_{rr})$ est petit devant k_{x0} .

On voit que si l'épaisseur du film de métal est choisie de telle sorte que les pertes intrinsèques et radiatives soient égalisées ($k_{ii} = k_{ir}$), alors, quand $\delta k = 0$, $R = 0$ et toute l'énergie incidente est couplée au PS.

D'autre part, en mesurant $R(\theta)$, la largeur du creux de réflectivité (fig. 4) donne une évaluation directe de l'atténuation du PS : $k_{ii} + k_{ir}$. Toute l'énergie couplée au plasmon et non rayonnée est dissipée par effet Joule dans le métal.

Partant de (I-22), on peut, dans le cas idéal où l'onde réfléchie est nulle, exprimer le coefficient de transmission ainsi :

$$t_p^2 = \left| \frac{\vec{E}_d}{\vec{E}_p^{(i)}} \right|^2 = \left| \frac{k'_x k_{pz} \alpha_m}{(\frac{\omega}{c})^2 (\epsilon_d - \epsilon_m) k_{ii}} \right| \quad (I-24)$$

Considérant que la puissance dissipée par le PS est égale à la puissance incidente sur la surface, Chen ⁽²³⁾ a retrouvé la formule (I-24) sans calculs.

Pour un interface Ag - air, à la longueur d'onde d'un laser He - Ne, $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ et $\epsilon_m = -20 + i\epsilon$ avec un prisme en verre SF10 : $\epsilon_p = 3$, le couplage est presque optimal pour $d = 500 \text{ \AA}$; on a alors $t_p \approx 15$ et $t_m \approx 3,5$

Pour un interface Ag - Benzene, $\epsilon_d = 2,25$, on a $t_p \approx 7$ et $t_m \approx 2,5$.

Il existe donc, en plus du confinement à l'interface, un facteur d'exaltation important qui explique l'intérêt des PS dans l'étude des phénomènes d'optique non linéaire en surface. (24-25)

3) - INTERACTION DE PLASMONS DE SURFACE EN ATR

a) Interactions non linéaires

Le but de ce paragraphe est de calculer les champs rayonnés par une polarisation non linéaire source. Cette présentation des interactions non linéaires de PS a pour origine la théorie développée par BLOEMBERGEN et Pershan en 1962⁽²⁶⁾; Appliquée ensuite à la génération et à la détection non linéaires d'ondes de surface⁽¹⁸⁾.

Nous nous plaçons dans la configuration de Kretschmann décrite au paragraphe précédent. La génération d'une onde est décrite par l'équation de Maxwell non linéaire :

$$\left(\vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times - \epsilon \frac{\omega^2}{c^2} \right) \vec{E} = \begin{cases} 4\pi \frac{\omega^2}{c^2} \vec{P}_d^{(NL)} & \text{pour } z < 0 \\ 4\pi \frac{\omega^2}{c^2} \vec{P}_m^{(NL)} & \text{pour } 0 < z < d \\ 0 & \text{pour } z > d \end{cases}$$

$$\vec{\nabla} \left(\epsilon \vec{E} + 4\pi \vec{P}^{NL} \right) = 0 \quad \text{partout} \quad (\text{I-25})$$

avec en plus, les conditions de continuité habituelles en $z = 0$ et $z = d$.

Pour des effets non linéaires optiques :

$$\vec{P}_a^{(NL)} = \vec{\chi}_a^{(n)} : \prod_{i=1}^n \vec{E}_{ai} \quad (a = m \text{ ou } d) \quad (\text{I-26})$$

$\vec{\chi}_a^{(n)}$ étant la susceptibilité non linéaire du n^e ordre du milieu a ⁽²⁷⁾ et les \vec{E}_{ai} étant les champs interagissant dans le milieu non linéaire considéré. On voit ici comment interviennent les facteurs d'exaltation à l'interface : $|\vec{E}_{ai}| = t_{ai} |\vec{E}_{pi}|$, \vec{E}_{pi} étant le champ incident dans le prisme.

Donc :
$$|\vec{P}_a^{(NL)}| \approx \left| \prod_{i=1}^n t_{ai} \right| \left| \vec{\chi}_a^{(n)} : \prod_{i=1}^n \vec{E}_{pi} \right| ,$$

ce qui peut faire une exaltation considérable. Dans le cas par exemple de la génération d'harmonique 3 d'un laser à YAG :

$$\begin{aligned}\lambda &= 1,064 \text{ } \mu\text{m} \\ \epsilon_m &= -60 + 1,2 i \quad (2) \\ \epsilon_d &= 1,7 \quad (\text{Methanol})\end{aligned}$$

et avec un prisme en verre B 16 : $\epsilon_p = 2,3$, on a : $\text{tdi} = 16$, ce qui fait une exaltation de $\sim 4.10^3$ sur la polarisation source Pd^{NL} qui comme nous le verrons plus loin intervient au carré dans l'intensité du 3e harmonique généré. C'est-à-dire que la puissance rayonnée est exaltée par un facteur $\sim 10^7$.

Dans le cas où $\vec{P}^{(\text{NL})}$ n'est pas dûe à des effets optiques, mais à des effets tels que l'effet thermique ou l'électrostriction, on peut toujours écrire (28):

$$\vec{P}_a^{(\text{NL})} = \delta \epsilon_a(x, z, t) \vec{E}_a \quad (\text{I-27})$$

\vec{E}_a étant le champ de l'onde servant à "sonder" l'effet dans le milieu a.

Quelle que soit l'origine de l'effet étudié, le formalisme adopté conviendra donc toujours à condition de bien choisir $\vec{P}^{(\text{NL})}$.

Par la suite, on ne considèrera que des milieux isotropes, \vec{P}^{NL} est donc polarisé dans le plan d'incidence et on peut écrire :

$$\vec{P}_a^{(\text{NL})} = \begin{pmatrix} P_{ax} \\ 0 \\ P_{az} \end{pmatrix} e^{i k_x x + i k_{az}^{(s)} z - i \omega t} + \text{cc} \quad (\text{I-28})$$

$k_a^{(s)}$ est le vecteur d'onde de la polarisation source et ω sa fréquence.

De par les conditions aux limites⁽²⁶⁾, on doit avoir la même composante k_x du vecteur d'onde dans chacun des milieux.

La forme générale de la solution à l'équation d'ondes

(I-25) est :

$\vec{E}_p^{(2)}$

pour $z > d$

$$\vec{E}_m^{(1)} + \vec{E}_m^{(2)} + \frac{4\pi}{\epsilon_m(k_{mz}^2 - k_{mz}^{(s)2})} \begin{pmatrix} -P_{mx}k_{mz}^2 + P_{mz}k_xk_{mz}^{(s)} \\ 0 \\ P_{mx}k_xk_{mz}^{(s)} + P_{mz}(k_{mz}^{(s)2} - \epsilon_m \frac{\omega^2}{c^2}) \end{pmatrix} e^{ik_x x + ik_{mz}^{(s)} z - i\omega t} + cc \quad \text{pour } 0 < z < d$$

$$\vec{E}_d + \frac{4\pi}{\epsilon_d(k_{dz}^2 - k_{dz}^{(s)2})} \begin{pmatrix} -P_{dx}k_{dz}^2 + P_{dz}k_xk_{dz}^{(s)} \\ 0 \\ P_{dx}k_xk_{dz}^{(s)} + P_{dz}(k_{dz}^{(s)2} - \epsilon_d \frac{\omega^2}{c^2}) \end{pmatrix} e^{ik_x x + ik_{dz}^{(s)} z - i\omega t} + cc \quad \text{pour } z < 0$$

où $\vec{E}_p^{(2)}$, $\vec{E}_m^{(1 \text{ et } 2)}$ et \vec{E}_d ,

(I-29)

solutions homogènes de l'équation d'onde, sont donnés en (I-16)

et vérifient (I-17). Les termes contenant P_x et P_z sont les solutions forcées de l'équation d'ondes (I-25).

Appliquant les conditions de continuité pour $E_{//}$ et D_{\perp} aux interfaces, on trouve un système d'équations linéaires déterminant les champs du même type que (I-18):

$$M \begin{pmatrix} E_{px}^{(2)} \\ E_{mx}^{(1)} \\ E_{mx}^{(2)} \\ E_{dx} \end{pmatrix} =$$

$$\frac{4\pi}{\epsilon_d (k_{dz}^2 - k_{dz}^{(s/2)})} \begin{pmatrix} -P_{dx} k_{dz}^2 + P_{dz} k_x k_{dz} \\ \epsilon_d k_{mz} k_{dz} (P_{dx} k_{dz}^{(s)} - P_{dz} k_x) \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + \frac{4\pi}{\epsilon_m (k_{mz}^2 - k_{mz}^{(s/2)})} \begin{pmatrix} P_{mx} k_{mz}^2 - P_{mz} k_x k_{mz} \\ -\epsilon_m k_{mz} k_{dz} (P_{mx} k_{mz}^{(s)} - P_{mz} k_x) \\ e^{i k_{mz} d} (-P_{mx} k_{mz}^2 + P_{mz} k_x k_{mz}^{(s)}) \\ -\epsilon_m k_{mz} k_{pz} e^{i k_{mz} d} (P_{mx} k_{mz}^{(s)} - P_{mz} k_x) \end{pmatrix}$$

(I-30)

où M est la matrice du système (I-18).

On a séparé les effets dûs au métal de ceux dûs au diélectrique car, de part la linéarité des équations de Maxwell, ils s'additionnent linéairement.

Si seul le diélectrique est non linéaire ($\vec{P}_m^{(NL)} = 0$),

on obtient pour le champ couplé dans le prisme $\vec{E}_p^{(2)}(d)$:

$$E_{px}^{(2)(d)} = \frac{8\pi \epsilon_m k_{pz} k_{mz} e^{-i k_{mz} d}}{\Delta(\omega, k_x)} \left\{ \frac{P_{dx} k_{dz} - P_{dz} k_x}{k_{dz} - k_{dz}^{(s)}} \right\} \quad (I-31)$$

$$\text{où } \Delta(\omega, k_x) = (\epsilon_m k_{dz} - \epsilon_d k_{mz}) (\epsilon_m k_{pz} - \epsilon_p k_{mz}) - e^{-2i k_{mz} d} (\epsilon_d k_{mz} + \epsilon_m k_{dz}) (\epsilon_m k_{pz} + \epsilon_p k_{mz}) \quad (I-32)$$

n'est autre que le déterminant de M qui doit être nul quand on excite un PS (cf. I-19).

On voit donc, que lorsqu'il y a accord de phase, $\vec{k}_a^{(s)} = \vec{k}_a$, l'onde créée est un PS et le dénominateur $\Delta(\omega, k)$ de (I-31) est résonnant. C'est ainsi que se manifeste l'accord de phase à deux dimensions.

Si seul le métal est non linéaire ($\vec{P}_d^{(NL)} = 0$), on obtient pour le champ couplé dans le prisme $\vec{E}_p^{(2)(m)}$:

$$\begin{aligned}
 E_{px}^{(2)(m)} = & \frac{8\pi \varepsilon_d k_{pz} k_{mz}}{\Delta(\omega, k_x)} e^{-i k_{mz} d} \times \\
 & \left\{ \frac{P_{mx} k_{mz} \left(k_{mz} + k_{mz}^{(s)} \frac{k_{dz} \varepsilon_m}{k_{mz} \varepsilon_d} \right) - P_{mz} k_x \left(k_{mz} + k_{dz} \frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_d} \right)}{k_{mz}^2 - k_{mz}^{(s)2}} \right. \\
 & + \frac{1}{2} \left(\frac{\varepsilon_m k_{dz}}{\varepsilon_d k_{mz}} - 1 \right) e^{i(k_{mz}^{(s)} + k_{mz})d} \left(\frac{P_{mx} k_{mz} + P_{mz} k_x}{k_{mz} + k_{mz}^{(s)}} \right) \\
 & \left. - \frac{1}{2} \left(\frac{\varepsilon_m k_{dz}}{\varepsilon_d k_{mz}} + 1 \right) e^{-i k_{mz} d} \left(\frac{P_{mx} k_{mz} - P_{mz} k_x}{k_{mz} - k_{mz}^{(s)}} \right) \right\}
 \end{aligned}
 \tag{I-32}$$

Il faut noter que lorsqu'on a accord de phase, l'onde créée par $\vec{P}_m^{(NL)}$ est un PS et que comme tel, il est confiné à l'interface. On a donc, comme au paragraphe précédent : $e^{-i k_{mz} d} \ll 1$, et on obtient, au premier ordre en $e^{-i k_{mz} d}$:

$$E_{px}^{(2)(m)} = \frac{8\pi \varepsilon_d k_{pz} k_{mz}}{\Delta(\omega, k_x)} e^{-i k_{mz} d} \left\{ \frac{P_{mx} k_{mz} - P_{mz} k_x}{k_{mz} - k_{mz}^{(s)}} \right\}
 \tag{I-33}$$

La ressemblance entre les expressions (I-33) et (I-31) n'est pas fortuite. Elle vient de ce que pour un PS, le métal et le diélectrique jouent un rôle équivalent au niveau des effets non linéaires. Le champ rayonné dans le diélectrique par une polarisation source dans le métal est donné en Annexe B.

Dans toutes nos expériences, nous n'avons utilisé le prisme que comme un coupleur linéaire. Il existe cependant des cas où le prisme est le milieu à caractère non linéaire⁽²⁹⁻³⁰⁾.

b) Interactions avec un réseau

Le problème ici est de connaître le champ rayonné lorsque la surface du métal n'est plus plane mais rugueuse (fig. 7). Pour ce faire, il existe des méthodes numériques⁽³¹⁾; cependant, lorsque l'amplitude des rugosités h est petite, on peut traiter leur effet comme une perturbation⁽³²⁾. Nous considérons dans la suite une rugosité à une dimension (réseaux de traits $\perp \hat{x}$).

On développe tous les champs en puissances de h :

$$\vec{E}(x,z) = \vec{E}^{(0)} + \vec{E}^{(1)} + \vec{E}^{(2)} + \dots \quad (\text{I-34})$$

Pour chacun des termes (i) à l'interface :

$$\vec{E}_{(x,z)}^{(i)} = \vec{E}_{(x,0)}^{(i)} + S(x) \left. \frac{\partial \vec{E}^{(i)}}{\partial z} \right|_{(x,0)} + \frac{1}{2} S(x)^2 \left. \frac{\partial^2 \vec{E}^{(i)}}{\partial z^2} \right|_{(x,0)} + \dots \quad (\text{I-35})$$

La normale à la surface s'écrit :

$$\vec{n} = \vec{n}^{(0)} + \vec{n}^{(1)} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \partial S / \partial x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I-36})$$

Insérant ces trois développements dans les conditions de continuité habituelles en $z = S(x)$:

$$\begin{aligned} \Delta \vec{H} \times \vec{n} &= 0 & \Delta \vec{B} \cdot \vec{n} &= 0 \\ \Delta \vec{E} \times \vec{n} &= 0 & \Delta \vec{D} \cdot \vec{n} &= 0 \end{aligned} \quad (\text{I-37})$$

où Δ est défini ainsi : $\Delta \vec{E} = \vec{E}_m - \vec{E}_d$,

et assurant leur vérification à chaque ordre (i) séparément, on obtient à l'ordre (1) en h (en $z = 0$) :

$$\begin{aligned} \Delta \vec{E}^{(1)} \times \vec{n}^{(0)} &= -\Delta \vec{E}^{(0)} \times \vec{n}^{(1)} - S(x) \frac{\partial \vec{E}^{(0)}}{\partial z} \times \vec{n}^{(0)} \\ \Delta \vec{D}^{(1)} \cdot \vec{n}^{(0)} &= -\Delta \vec{D}^{(0)} \cdot \vec{n}^{(1)} - S(x) \frac{\partial \vec{D}^{(0)}}{\partial z} \cdot \vec{n}^{(0)} \end{aligned} \quad (\text{I-38})$$

et de même pour \vec{H} et \vec{B} .

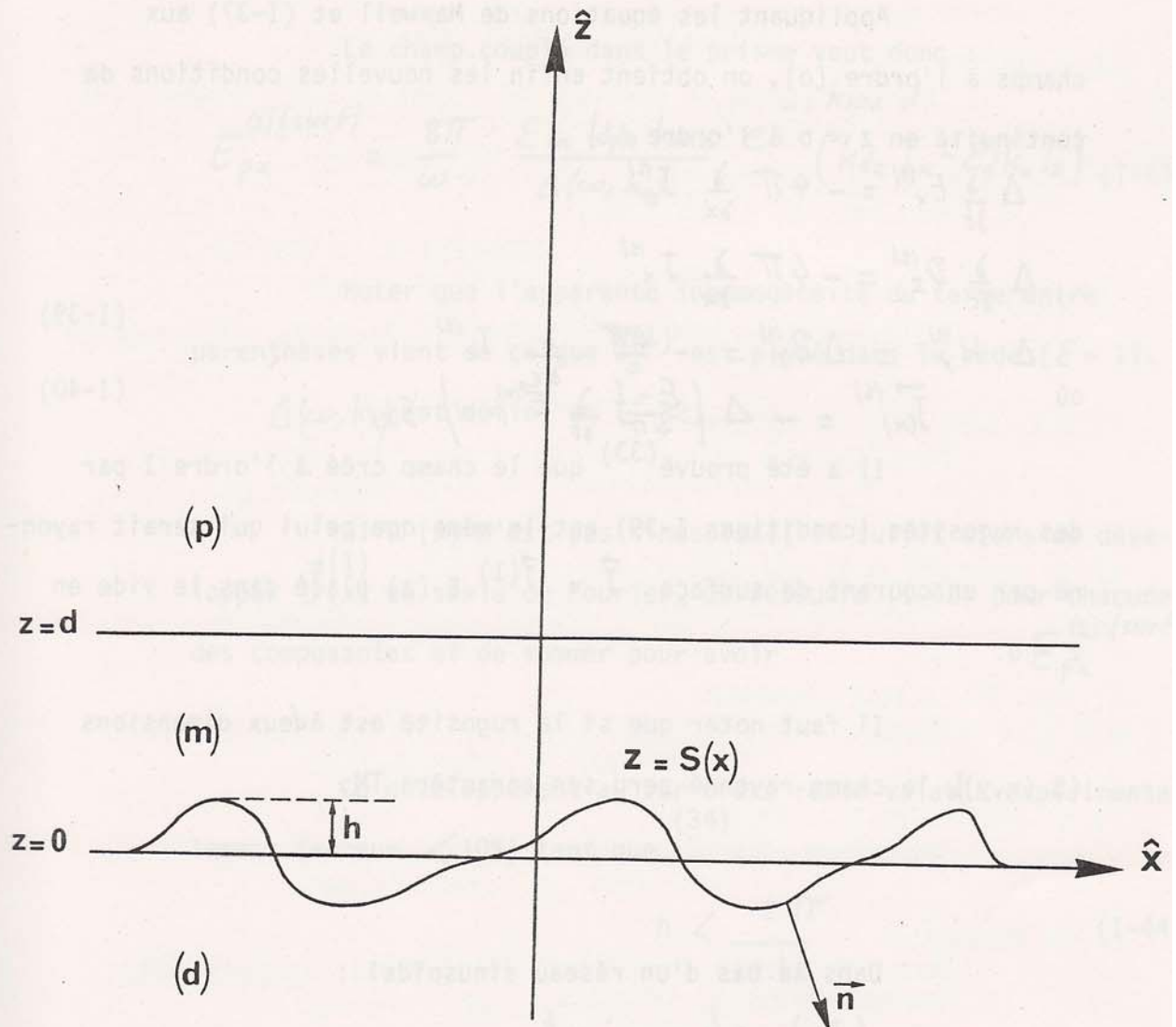


figure 7 : interface métal diélectrique rugueux : $z = S(x)$.

Appliquant les équations de Maxwell et (I-37) aux champs à l'ordre (0), on obtient enfin les nouvelles conditions de continuité en $z = 0$ à l'ordre (1) :

$$\begin{aligned}\Delta \frac{\partial}{\partial t} E_x^{(1)} &= -4\pi \frac{\partial}{\partial x} J_z^{(1)} \\ \Delta \frac{\partial}{\partial t} D_z^{(1)} &= -4\pi \frac{\partial}{\partial x} J_x^{(1)}\end{aligned}\quad (I-39)$$

$$\begin{aligned}\Delta H_y^{(1)} &= \Delta B_y^{(1)} = -\frac{4\pi}{c} \frac{\partial}{\partial x} J_x^{(1)} \\ \text{ou } \vec{J}_{(x)}^{(1)} &= -\Delta \left(\frac{\epsilon-1}{4\pi} \frac{\partial}{\partial t} \vec{E}^{(0)}(x,0) \right) S(x)\end{aligned}\quad (I-40)$$

Il a été prouvé⁽³³⁾ que le champ créé à l'ordre 1 par des rugosités (conditions I-39) est le même que celui qui serait rayonné par un courant de surface $\vec{J} = \vec{J}^{(1)} \cdot \delta(z)$ placé dans le vide en $z = 0$.

Il faut noter que si la rugosité est à deux dimensions ($S(x,y)$), le champ rayonné perd son caractère TM.

Dans le cas d'un réseau sinusoïdal :

$$\begin{aligned}\vec{J}^{(1)} &= \begin{pmatrix} J_x \\ 0 \\ J_z \end{pmatrix} e^{i k_x x - i \omega t} + c.c. \\ \text{avec } k_x &= k_x^{inc} \pm k_x^{\text{réseau}}\end{aligned}\quad (I-41)$$

et on peut à présent déterminer les champs à l'ordre (1). Sachant qu'ils ont la même forme que les ondes libres de (I-29), on obtient avec (I-39) :

$$M \begin{pmatrix} E_{px}^{(2)} \\ E_{mx}^{(1)} \\ E_{mx}^{(2)} \\ E_{dx} \end{pmatrix} = \frac{4\pi}{\omega} \begin{pmatrix} k_x J_z \\ k_{mx} k_{dx} J_x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}\quad (I-42)$$

M est la matrice de (I-18) et on omet l'indice (1) du développement.

Le champ couplé dans le prisme vaut donc :

$$E_{px}^{(2)(surf)} = \frac{8\pi}{\omega} \frac{\epsilon_m k_{pz} k_{mz}}{\Delta(\omega, k_x)} e^{-i k_{mz} d} (k_{dz} J_x - \epsilon_d k_x J_z) \quad (I-43)$$

Noter que l'apparente inhomogénéité du terme entre parenthèses vient de ce que $J^{(1)}$ est placé dans le vide ($\epsilon = 1$).

$\Delta(\omega, k_x)$ est défini en (I-32).

Si $S(x)$ n'est pas sinusoïdal, il suffit alors de développer $J^{(1)}(x)$ en série de Fourier, de résoudre (I-42) pour chacune des composantes et de sommer pour avoir $E_{px}^{(2)(surf)}$.

Ce développement au 1er ordre reste valable expérimentalement (erreur $< 10\%$) tant que (34) :

$$h < \frac{2\pi}{10 k_x} \quad (I-44)$$

REFERENCES DU CHAPITRE I

- 1) C. KITTEL :
"Introduction à la physique de l'état solide", Bordas (72)
- 2) P.B. JOHNSON et R.W. CHRISTY :
Phys.rev. B, 6, 4370, (72)
- 3) D.PINES :
"Elementary excitations in solids ", Benjamin (63), page 207.
- 4) J.E. SIPE et G.I. STEGEMAN :
Dans "Surface Palaritons" édité par V.M. Agranovich et
D.L. Mills, North Holland (82), page 661.
- 5) E. BURSTEIN et F. De MARTINI (éditeurs) :
"Polaritons", Pergamon (72)
- 6) D.L. MILLS et E. BURSTEIN :
Rep.prog.phys. 37, 817, (74).
- 7) G. BORSTEL et H.J. FALGE :
Appl. Phys, 16, 211, (78).
- 8) H. RAETHER :
Dans "Physics of thin films" édité par G. Hass et coll.,
Academic Press 9, 145 (77)
- 9) A. SOMMERFELD :
Ann.Physik, 28, 665, (09).
- 10) A.D. BOARDMANN :
Dans "Electromagnetic surface modes"
édité par A.D. Boardmann; J. Willey(82), page 1.
- 11) U. FANO :
J. Opt.Soc.Am. 31, 213, (41)
- 12) K.D. SEVIER :
"Low energy electron spectrometry", Willey (72)

- 13) H. RAETHER :
"Excitation of plasmons and interband transitions by electrons", Springer-Verlag (80).
- 14) D. HEITMANN :
Opt. Comm, 20, 292, (77)
- 15) M. NEVIERE et R. REINISCH :
Phys. rev. B, 26, 5403, (82)
- 16) A. OTTO :
Z. Phys, 216, 398, (68)
- 17) E. KRETSCHMANN :
Z. Phys, 241, 313, (71)
- 18) F. De MARTINI et Y.R. SHEN :
Phys.rev.lett. 36, 216, (76)
- 19) F. De MARTINI, G. GIULIANI, P. MATALONI, E. PALANGE et Y.R. SHEN :
Phys.rev.lett, 37, 440 (76)
- 20) F. De MARTINI, M. COLOCCI, S.E. KOHN et Y.R. SHEN :
Phys.rev.lett. 38, 1223 (76)
- 21) A. OTTO :
Dans ref. (5), page 117
- 22) M. BORN et E. WOLF :
"Principles of optics", Pergamon (75)
- 23) C.K. CHEN :
Ph. D. Thesis, Berkeley, Déc. 80.
- 24) D. RICARD :
Ann. Physique, 8, 273 (83)
- 25) M. FUKUI et G.I. STEGEMAN :
dans "Electromagnetic surface modes" édité par A.D. BOARDMAN;
Willey (82), page 725.
- 26) N. BLOEMBERGEN et P.S. PERSHAN :
Phys.rev., 128, 606, (62)

- 27) C. FLYTZANIS :
dans "Quantum electronics : a treatise" Vol. I, édité par
H. RABIN et CL.TANG; Academic Press (75), page 9
- 28) D.H. AUSON :
dans "Ultrasbort light pulses" édité par S.L.Shapiro;
Springer Verlag (77),page 155.
- 29) P. MARTINOT :
Thèse de 3ème cycle, Orsay, Juin 83;
P. MARTINOT, S. LAVAL et A. KOSTER : J. Physique, 45, 597 (84)
- 30) C. LIAO et G.I. STEGEMAN :
Appl.phys.lett, 44, 164 (84)
- 31) R. PETIT :
Nouv.rev.Opt. 6, 129, (75);
et R. PETIT (éditeur) : "Electromagnetic theory of gratings",
Springer Verlag (80).
- 32) H.J. JURANEK :
Z. Phys, 233, 324, (70)
- 33) E. KROGER et E. KRETSCHMANN :
Z. Phys, 237, 1, (70).
- 34) H. RAETHER :
dans "Surface Polaritons" édité par VM. AGRANOVICH et
D.L. MILLS; North Holland (82), page 331.

CHAPITRE II

CONFIGURATION EXPERIMENTALE

1 - LA SOURCE LASER

2 - LES SURFACES D'ARGENT

3 - PLASMONS DE SURFACE DE HAUTE ENERGIE

1) - LA SOURCE LASER

Un laser à YAG (Yttrium aluminium garnet) dopé au néodyme (Nd^{3+}) a été choisi car il présente de nombreux avantages :

Sa technologie est bien maîtrisée⁽¹⁾.

Il est possible d'en coupler les modes, afin d'obtenir des impulsions lumineuses de 25 picosecondes⁽²⁾, ce qui est suffisant pour la résolution temporelle de nos expériences et permet, avec peu d'énergie, d'avoir une grande intensité lumineuse (environ 10^9 W).

Enfin, son gain est homogène, ce qui simplifie considérablement l'obtention d'impulsions lumineuses "propres" spectralement⁽³⁾.

Pour sa construction, nous nous sommes inspirés d'un modèle ayant déjà existé au laboratoire⁽⁴⁾ (figure 1).

a) Oscillateur

La cavité de l'oscillateur, de longueur optique $d = 1,2$ m, est constituée de deux miroirs M_1 et M_2 . M_1 , de rayon de courbure $R_1 = 5$ m, traité R max à $1,06 \mu\text{m}$ est fourni par CVI. M_2 , plan (R infini), est une lame de verre ordinaire prismatique en B 16 ($R = 4\%$). Comme toujours, dans les lasers à modes couplés, aucune lame de verre parallèle n'est insérée dans la cavité afin d'éviter toute sélection de mode⁽⁵⁾.

Le miroir M_1 est en contact avec la cuve C de colorant, ce qui lui donne un rayon effectif $R'_1 = 3,3$ m. On a donc une bonne stabilité optique de la cavité⁽⁶⁾ car :

$$0 < \left(1 - \frac{d}{R'_1}\right) \left(1 - \frac{d}{R_2}\right) = 0,64 < 1 \quad (\text{II-1})$$

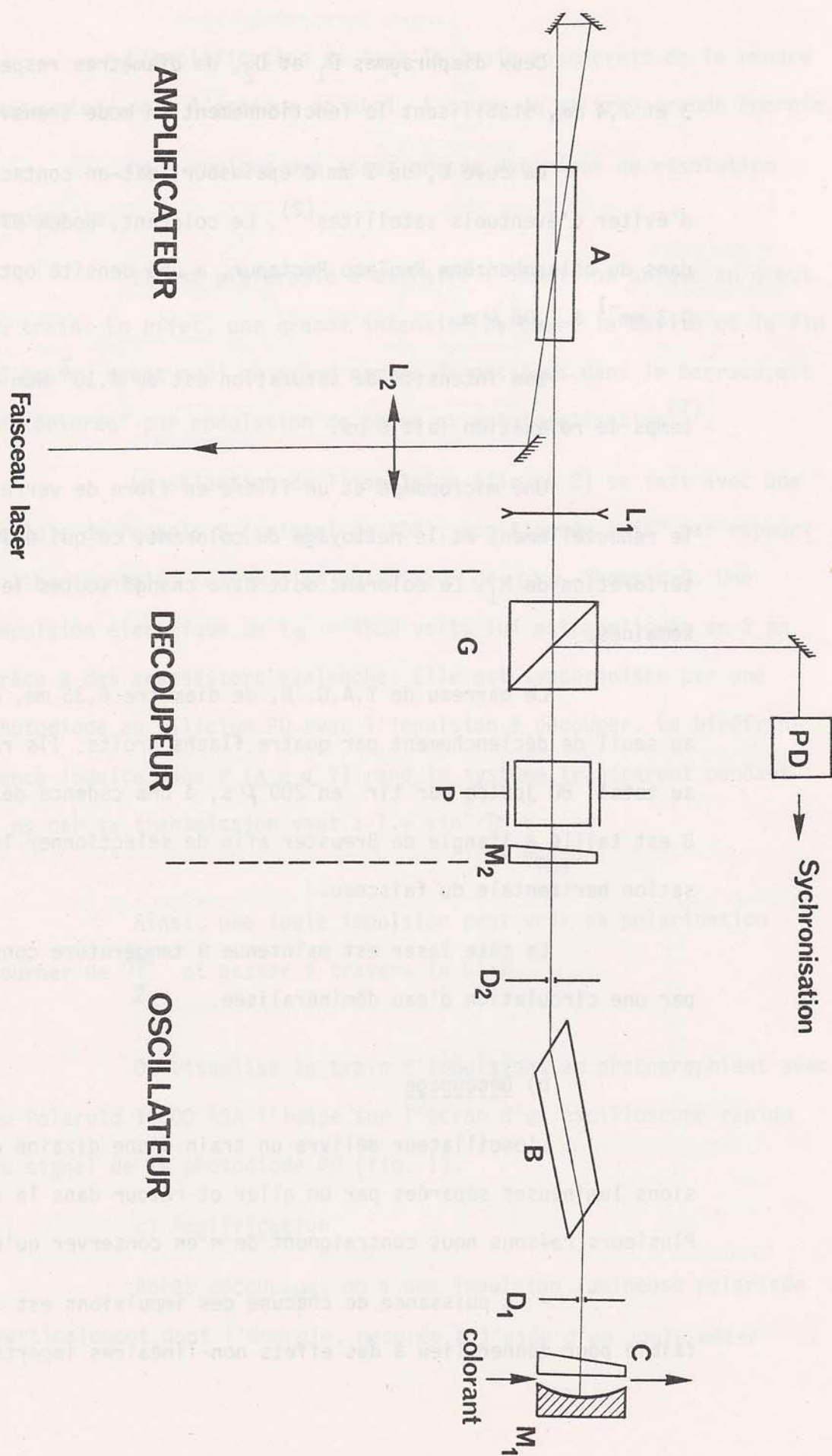


figure 1 : LE LASER

Deux diaphragmes D_1 et D_2 , de diamètres respectifs 3 et 2,4 mm, stabilisent le fonctionnement en mode transverse TEM_{00} .

La cuve C, de 1 mm d'épaisseur, est en contact^{avec} M_1 afin d'éviter d'éventuels satellites⁽²⁾. Le colorant, Kodak 9740, dilué dans du chlorobenzène Prolabo Rectapur, a une densité optique de $0,3 \text{ mm}^{-1}$ à $1,06 \mu\text{m}$.

Son intensité de saturation est de 4.10^7 Wcm^{-2} et son temps de relaxation fait 8 ps.

Une micropompe et un filtre en fibre de verre assurent le renouvellement et le nettoyage du colorant, ce qui évite la détérioration de M_1 . Le colorant doit être changé toutes les deux semaines.

Le barreau de Y.A.G. B, de diamètre 6,35 mm, est pompé au seuil de déclenchement par quatre flashes droits. Ils rayonnent au total 80 joules par tir en $200 \mu\text{s}$, à une cadence de 2,5 Hz. B est taillé à l'angle de Brewster afin de sélectionner la polarisation horizontale du faisceau.

La tête laser est maintenue à température constante par une circulation d'eau déminéralisée.

b) Découpage

L'oscillateur délivre un train d'une dizaine d'impulsions lumineuses séparées par un aller et retour dans la cavité (8ns). Plusieurs raisons nous contraignent de n'en conserver qu'une :

- La puissance de chacune des impulsions est trop faible pour donner lieu à des effets non-linéaires importants.

- L'amplification de tout le train risquerait de le rendre destructeur pour l'optique en aval, à cause de sa trop grande énergie.

- Nous voulons une assez grande dynamique de résolution temporelle.

Il est préférable d'extraire l'impulsion unique au début du train. En effet, une grande intensité parcourt la cavité et la fin du train, ayant subi un grand nombre de passages dans le barreau, est "détériorée" par modulation de phase et autofocalisation⁽⁷⁾.

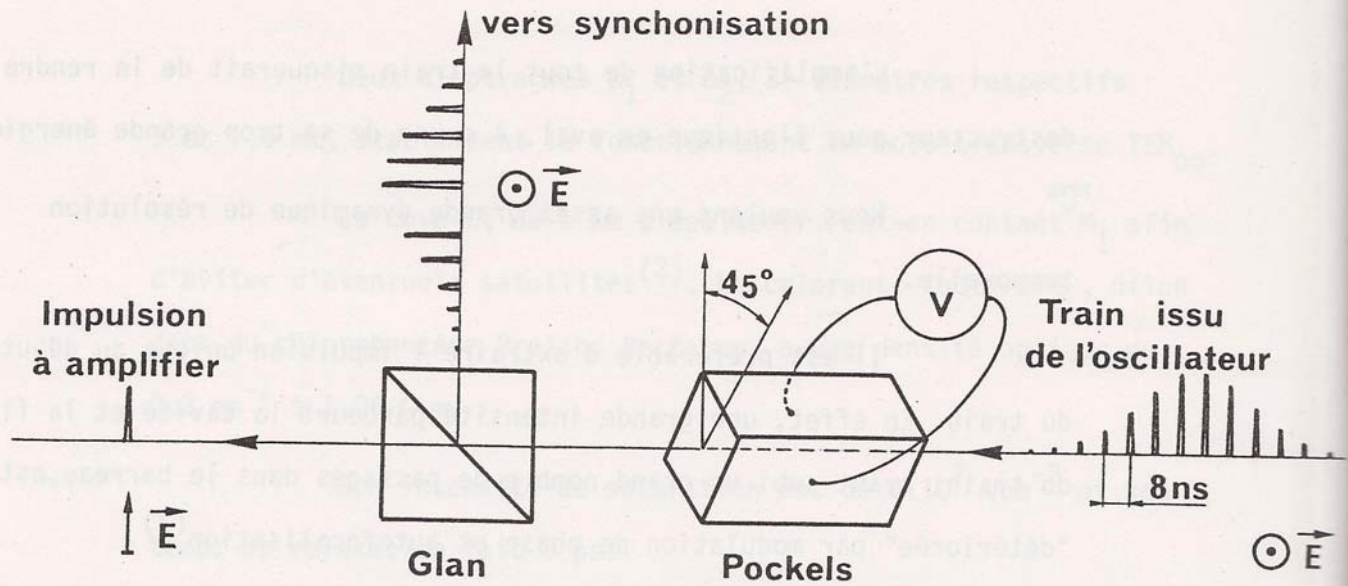
La sélection de l'impulsion (figure 2) se fait avec une cellule de Pockels P (cristal de KDP), positionnée à 45° par rapport à l'horizontale, suivie d'un polariseur de Glan-Thomson G. Une impulsion électrique de $V_a = 4800$ volts lui est appliquée en 2 ns grâce à des transistors avalanche. Elle est synchronisée par une photodiode au silicium PD avec l'impulsion à découper. La biréfringence induite dans P ($\Delta n \propto V$) rend le système transparent pendant 2 ns car sa transmission vaut : $T = \sin^2 \frac{\pi}{2} \frac{V}{V_{\pi/2}}$.

Ainsi, une seule impulsion peut voir sa polarisation tourner de $\frac{\pi}{2}$ et passer à travers le Glan.

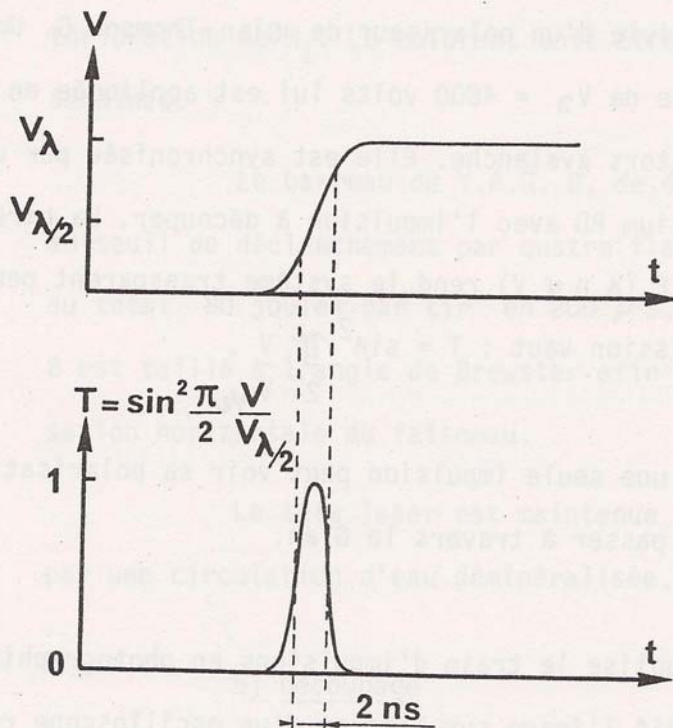
On visualise le train d'impulsions en photographiant avec du Polaroid 10000 ASA l'image sur l'écran d'un oscilloscope rapide du signal de la photodiode PD (fig. 1).

c) Amplification

Après découpage, on a une impulsion lumineuse polarisée verticalement dont l'énergie, mesurée à l'aide d'un joule mètre



a) découpage de l'impulsion :



b) schéma de principe : le créneau de tension (V) appliqué à la pockel est synchronisé avec l'impulsion à découper. Le système Pockels + Glan voit alors sa transmission (T) passer par 1 pendant 2 ns. La polarisation de l'impulsion ainsi découpée est tournée de $\pi/2$.

Figure 2 : le découpeur

pyroélectrique, est d'environ 1 mJ. Elle est amplifiée par double passage dans un barreau A de Nd^{3+} YAG, de diamètre 6,35 mm, dont les faces, taillées à 6° , sont traitées antireflet à $1,06 \mu\text{m}$. La tête laser est identique à celle de l'oscillateur.

Afin d'éviter les effets non linéaires dégradateurs d'impulsion⁽⁷⁾, on réduit l'intensité du faisceau en dilatant sa section à l'aide d'un système afocal de grandissement 4. C'est l'objet des lentilles L_1 et L_2 (fig. 1).

Le laser délivre finalement une impulsion lumineuse polarisée de ~ 30 mJ à $1,06 \mu\text{m}$. Sa structure transverse est proche du TEM₀₀ et elle fait ~ 5 mm de diamètre. Sa durée de ~ 25 ps, est presque limitée par transformée de Fourier ($\Delta\nu \sim 1 \text{ cm}^{-1}$)

d) Utilisation de la lumière du laser

L'impulsion est doublée en fréquence dans un cristal de KDP de 3 cm de long accordé en phase (fig. 3). La lumière à $1,06 \mu\text{m}$ est coupée par un verre coloré BG 38⁽⁸⁾. On obtient ~ 5 mJ de lumière polarisée horizontalement à 5320 \AA . Le faisceau est divisé en deux parties égales par une séparatrice.

La partie réfléchie est envoyée sur une "ligne à retard" constituée d'un miroir coin de cube monté sur un chariot mobile. Le coin de cube assure l'invariance du retard introduit lors de la réflexion et de la direction du faisceau réfléchi.

A un déplacement de 1 mm correspond un retard de 6,67 ps. Ce faisceau de diamètre 5 mm est appelé la "pompe". On atténue sur son trajet afin qu'elle n'excède pas 0,5 mJ par tir.

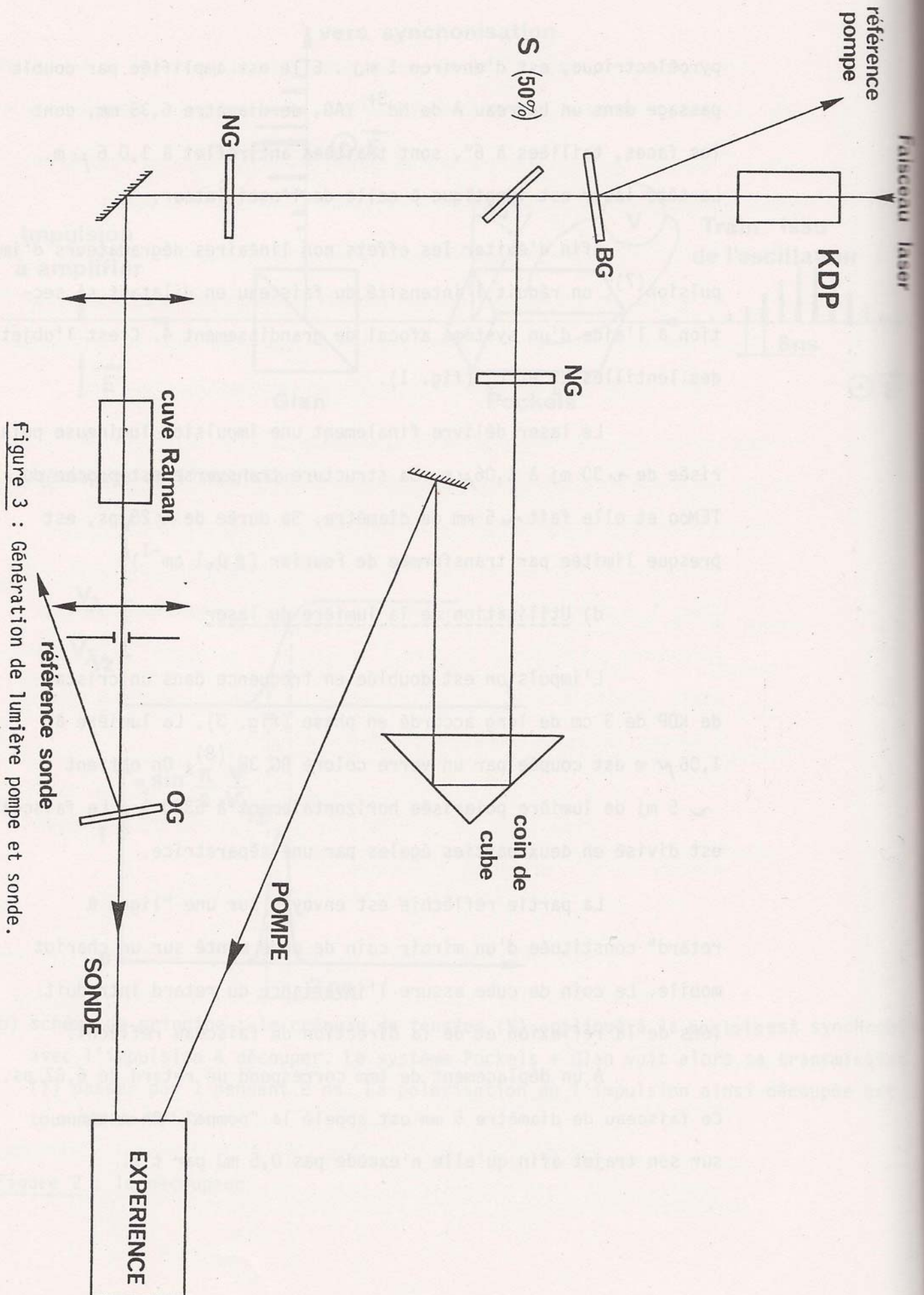


Figure 3 : Génération de lumière pompe et sonde.

Le faisceau transmis est focalisé, après atténuation d'un facteur 10, dans une cuve Raman Hellma de 5 cm de longueur remplie de liquide organique. On obtient ainsi, par effet Raman stimulé dans l'éthanol ou dans le benzène, les fréquences stokes à 6302 ou 5616 Å respectivement (9).

La lumière collimatée et diaphragmée à 3 mm est séparée du fondamental à l'aide de verres colorés OG⁽⁸⁾. C'est le faisceau "sonde" qui n'excède pas 0,05 mJ par tir.

La divergence des deux faisceaux est d'environ 2.10^{-4} rd.

On règle la coïncidence temporelle entre pompe et sonde par génération de fréquence somme en focalisant les deux faisceaux sur une lame de quartz cristallin de 1 mm d'épaisseur. Le signal somme se détecte facilement avec un tube photomultiplicateur 150 UVP (photocathode S13). On élimine les fréquences fondamentales avec des verres UG. Le rapport signal sur bruit excède 50. La forme du signal en fonction du retard est la fonction de corrélation des impulsions pompe et sonde. On mesure la durée $\tau = 28$ ps des impulsions à partir de la largeur à mi-hauteur $\ell_{1/2}$ de la courbe : $\tau = \ell_{1/2} / \sqrt{2}$ pour deux impulsions gaussiennes de même durée.

Pour terminer ce paragraphe sur le laser, il faut préciser que toute l'expérience est montée sur des bancs de granit dont la stabilité s'est avérée suffisante. Les signaux, collectés par les détecteurs, sont digitalisés à l'aide d'une chaîne de mesure à 4 voies de 8 bits, et traités par un microordinateur Apple II. La synchronisation est réalisée par la photodiode PD de la figure 1. Pour chaque point expérimental, on accumule au moins sur 20 tirs ayant eu un niveau de référence suffisant.

2) - LES SURFACES D'ARGENT

Nous avons choisi l'argent comme milieu actif pour plusieurs raisons :

- Les films d'argent s'obtiennent aisément par évaporation⁽¹⁰⁾.
- Aux fréquences optiques, Ag est le métal noble le moins absorbant⁽¹¹⁾.
- Les propriétés non linéaires des PS dans Ag ont déjà été l'objet de nombreuses études⁽¹²⁾.

a) Préparation

Elles sont préparées par évaporation à 20 Å/sec , sous un vide de 10^{-6} Torr, de fil d'argent Prolabo pur à 99,99 %. Le fil est évaporé au moyen d'un creuset de tungstène chauffé électriquement. L'épaisseur, proche de 500 Å , est contrôlée avec un moniteur à quartz vibrant Kronos QM 311. Elle est vérifiée à posteriori avec les courbes de réflectivité et en mesurant la densité optique d'une lame témoin.

Les substrats permettant de réaliser la configuration ATR sont des prismes équilatéraux (60°) de $40 \times 40 \text{ mm}$ en verres B 16 ($n_p = 1,516$) ou SF 10 ($n_p = 1,734$), selon la longueur d'onde de travail (le SF10 absorbe dans l'UV) et l'indice du diélectrique ($n_p > n_d$). Ces verres, disponibles commercialement, ont des propriétés connues⁽¹³⁾, sont stables chimiquement et possèdent un centre d'inversion.

La face sur laquelle on évapore doit être, au préalable, soigneusement décapée au mélange sulfochromique puis dégraissée et essuyée à l'aide d'un chiffon imbibé d'éthanol pur.

b) Montage du prisme (figure 4)

Le diélectrique choisi est contenu dans une cuve en duralumin placée en contact avec le prisme. L'étanchéité est assurée par un joint en viton. La cuve est vidangée à l'aide d'une seringue par l'orifice de remplissage.

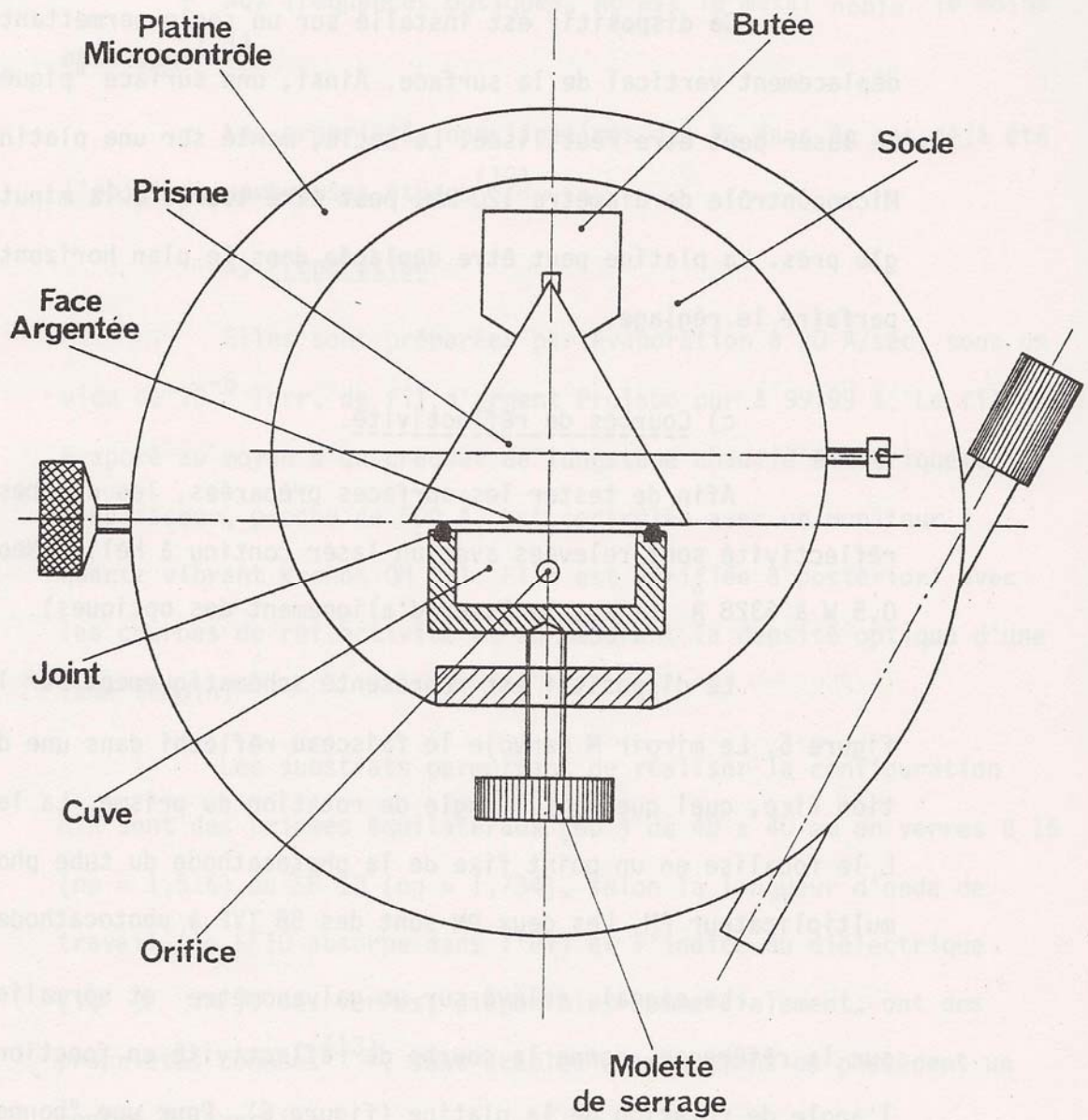
Ce dispositif est installé sur un socle permettant un déplacement vertical de la surface. Ainsi, une surface "piquée" par le laser peut être réutilisée. Le socle, monté sur une platine Microcontrôle de diamètre 120 mm, peut être tourné à la minute d'angle près. La platine peut être déplacée dans le plan horizontal pour parfaire le réglage.

c) Courbes de réflectivité.

Afin de tester les surfaces préparées, les courbes de réflectivité sont relevées avec un laser continu à Hélium-Néon de 0,5 W à 6328 \AA (c'est le laser d'alignement des optiques).

Le dispositif est représenté schématiquement sur la figure 5. Le miroir M renvoie le faisceau réfléchi dans une direction fixe, quel que soit l'angle de rotation du prisme. La lentille L le focalise en un point fixe de la photocathode du tube photomultiplicateur PM. Les deux PM sont des 56 TVP à photocathode S20.

Le signal, relevé sur un galvanomètre et normalisé sur la référence, donne la courbe de réflectivité en fonction de l'angle de rotation de la platine (figure 6). Pour une "bonne" surface, le creux de réflectivité (2 % sur la figure 6) est visible à l'oeil nu. C'est avec ce genre de relevés que l'on optimise l'épaisseur du film d'argent évaporé, le but étant de coupler au mieux le plasmon au faisceau incident.



figure_4 : Montage du prisme.

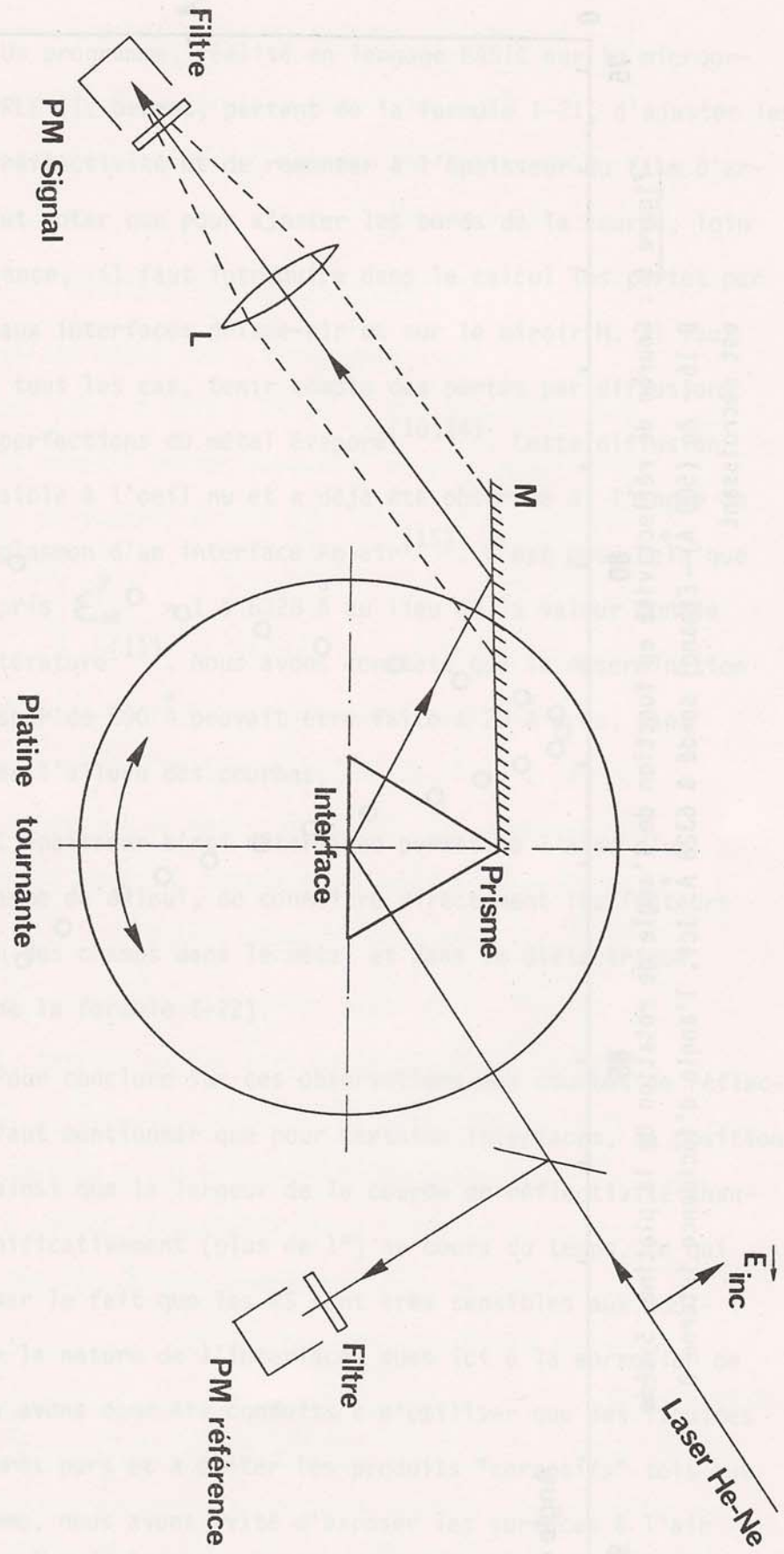


figure 5 : Dispositif de relevé des courbes de réflectivité.

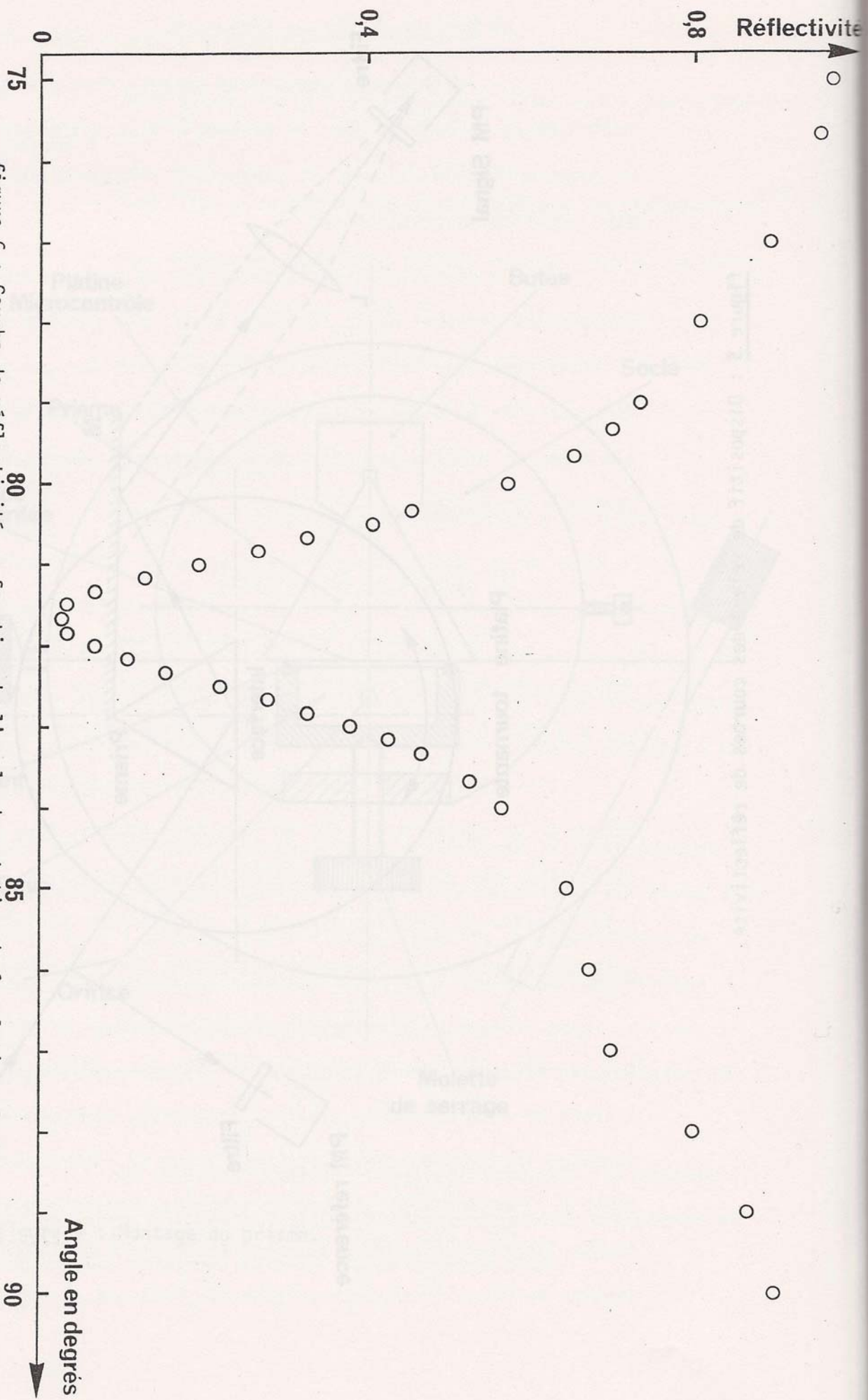


figure 6 : Courbe de réflectivité en fonction de l'angle de rotation de la platine. Système B 16 - Ag (500 Å) - Ethanol sondé à 6328 Å. Ici, l'angle d'incidence interne 0

Un programme, réalisé en langage BASIC sur le microordinateur APPLE II, permet, partant de la formule I-21, d'ajuster les courbes de réflectivité et de remonter à l'épaisseur du film d'argent. Il faut noter que pour ajuster les bords de la courbe, loin de la résonance, il faut introduire dans le calcul les pertes par réflexion aux interfaces prisme-air et sur le miroir M. Il faut aussi, dans tous les cas, tenir compte des pertes par diffusion dues aux imperfections du métal évaporé^(10,14). Cette diffusion est bien visible à l'oeil nu et a déjà été observée à l'angle de résonance plasmon d'un interface Ag-air⁽¹⁵⁾. C'est pour cela que nous avons pris $\epsilon_m'' = 1$ à 6328 Å au lieu de la valeur donnée dans la littérature⁽¹¹⁾. Nous avons constaté que la détermination d'une épaisseur de 500 Å pouvait être faite à 20 Å près, sans trop affecter l'allure des courbes.

L'épaisseur ainsi déterminée permet, à l'aide d'un autre programme de calcul, de connaître directement les facteurs d'exaltation des champs dans le métal et dans le diélectrique (à partir de la formule I-22).

Pour conclure sur ces observations des courbes de réflectivité, il faut mentionner que pour certains interfaces, la position du minimum ainsi que la largeur de la courbe de réflectivité changeaient significativement (plus de 1°) au cours du temps. Ce qui s'explique par le fait que les PS sont très sensibles aux modifications de la nature de l'interface, dues ici à la corrosion de Ag⁽¹⁶⁾. Nous avons donc été conduits à n'utiliser que des liquides organiques très purs et à éviter les produits "corrosifs" tels que l'eau. De même, nous avons évité d'exposer les surfaces à l'air libre et dans les expériences à l'interface Ag-Air, l'air était un mélange riche en azote retenu dans une cuve étanche.

3) - PLASMONS DE SURFACE DE HAUTE ENERGIE

Le but de ces expériences préliminaires était d'observer la déformation des courbes de réflectivité sous l'effet d'une grande intensité lumineuse.

a) Changements de réflectivité

Pour cette étude, nous avons utilisé le fait que pour une surface de 500 \AA , le PS à 5320 \AA a une courbe de réflectivité plus large qu'à la fréquence Stokes (figure 7). En effet, d'après le chapitre I, si $\delta k(\lambda)$ est la largeur de la courbe à la longueur d'onde λ ,

$$\text{alors : } \frac{\delta k(\lambda_1)}{\delta k(\lambda_2)} \approx \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1} \right)^2 \quad (\text{II-2})$$

Nous avons donc superposé les résonances PS de la pompe (5320 \AA) et de la sonde (6302 \AA) et étudié le signal à 6302 \AA en fonction de l'angle du prisme et du retard entre les faisceaux. Le PS pompe est toujours excité de façon résonante quand le PS sonde ne l'est plus (figures 7 et 8).

Nous avons d'abord étudié le système B16 - Ag - Ethanol à 6302 \AA , pompé avec $0,5 \text{ mJ}$ de Vert. Se plaçant à angle fixe, de part et d'autre de la résonance à 6° (fig. 7), et variant le retard pompe-sonde autour du 0, on obtient l'évolution de la réflectivité de la sonde représentée figure 9. Pour les deux angles, on observe un effet aux temps courts (100 ps) suivi d'un effet de signe opposé aux temps longs.

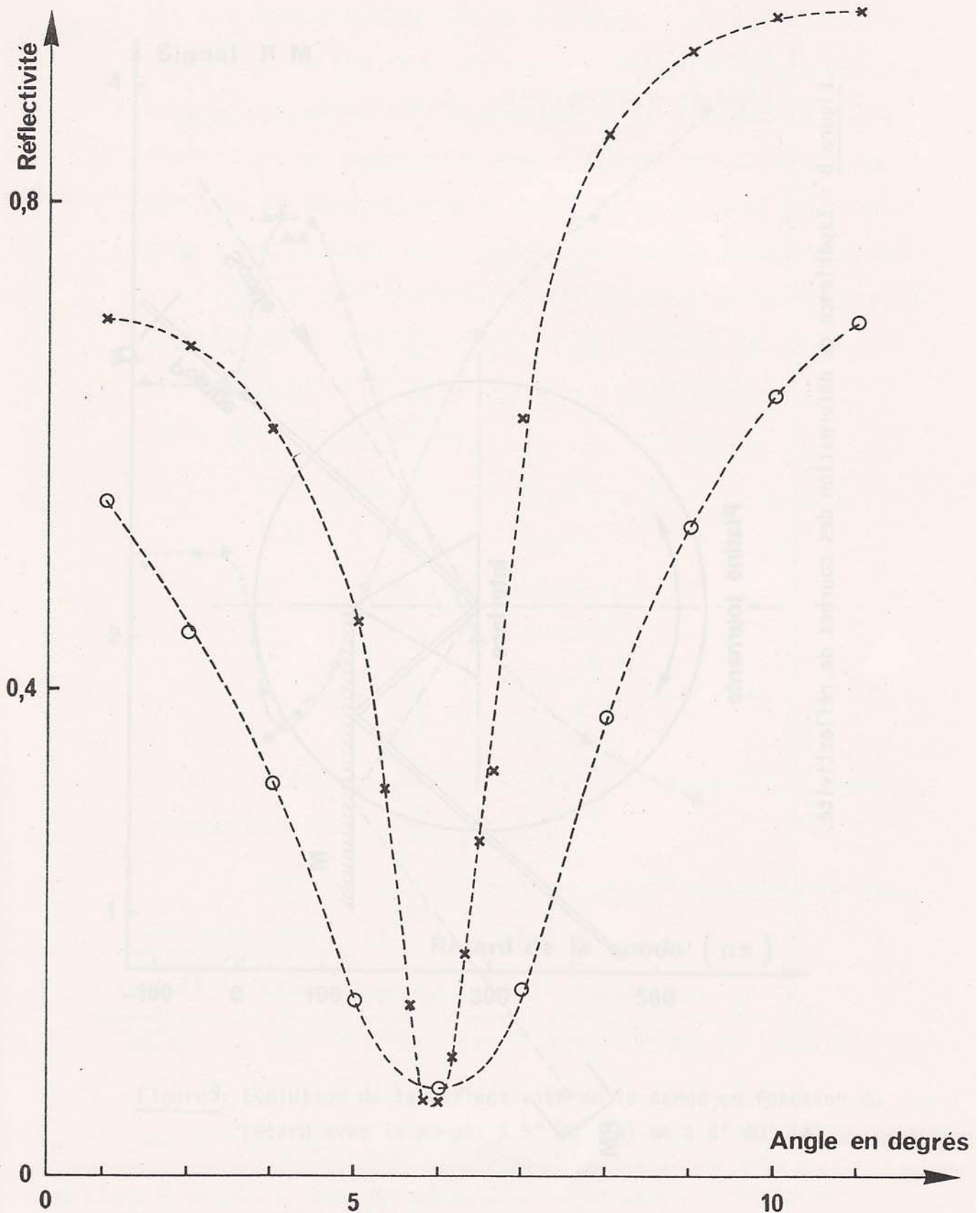


Figure 7 : Plasmon pompe (○) et plasmon sonde (x) en fonction de l'angle de rotation de la platine pour un système B16 - Ag - éthanol.

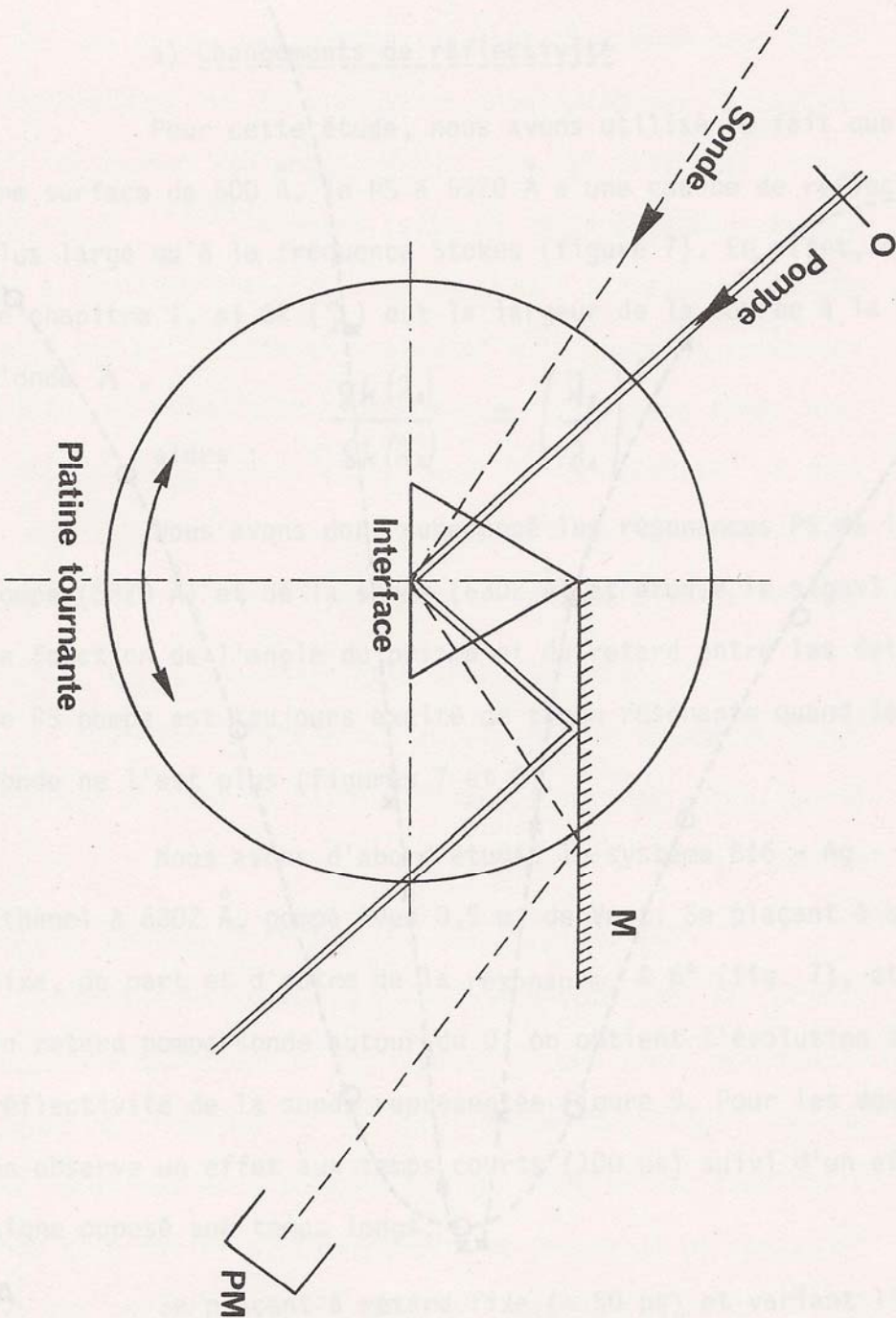


Figure 8 : Expérience de déformation des courbes de réflectivité.

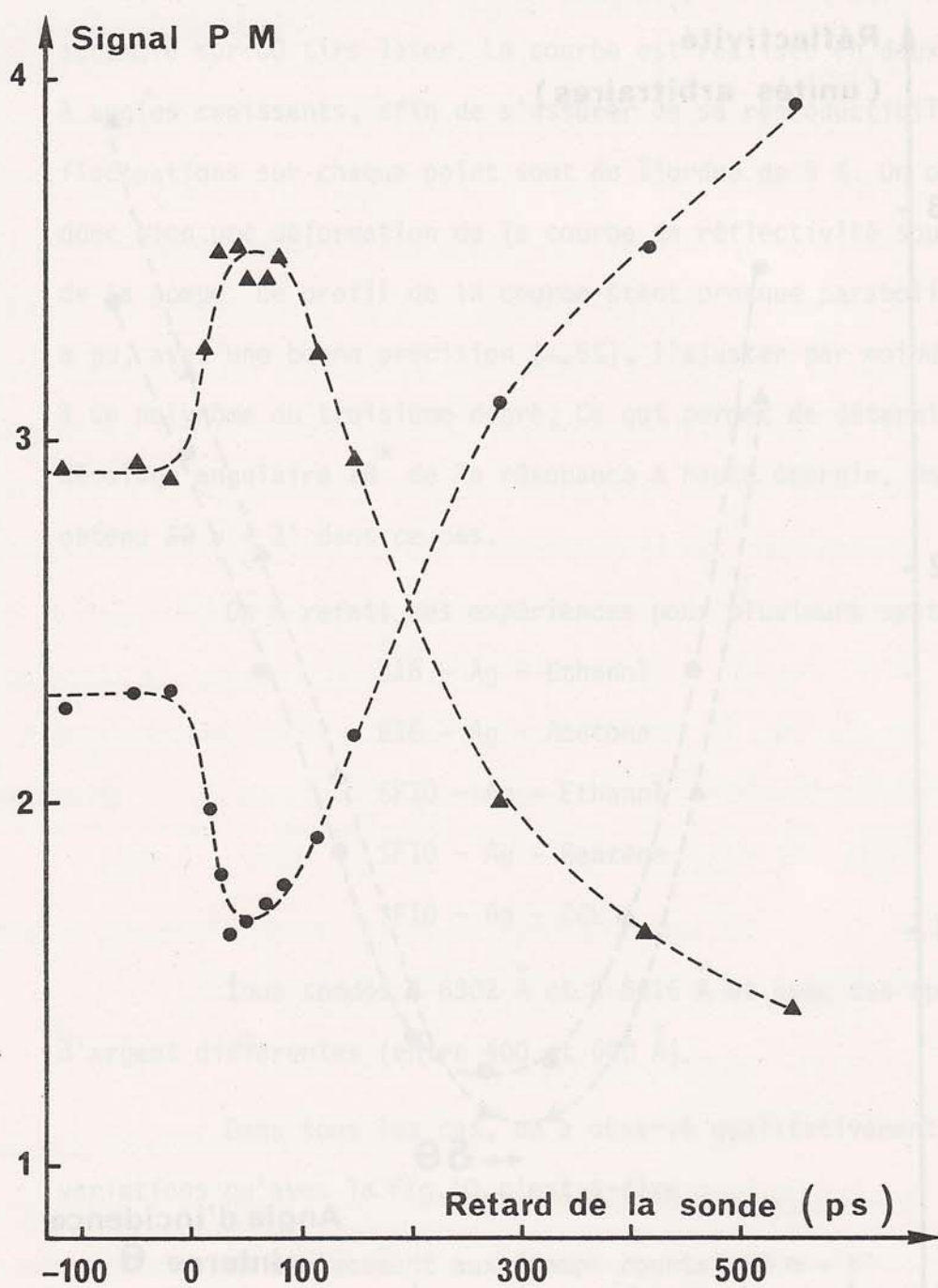


Figure 9: Evolution de la réflectivité de la sonde en fonction du retard avec la pompe; à 5° 20' (●) et à 6° 40' (▲).

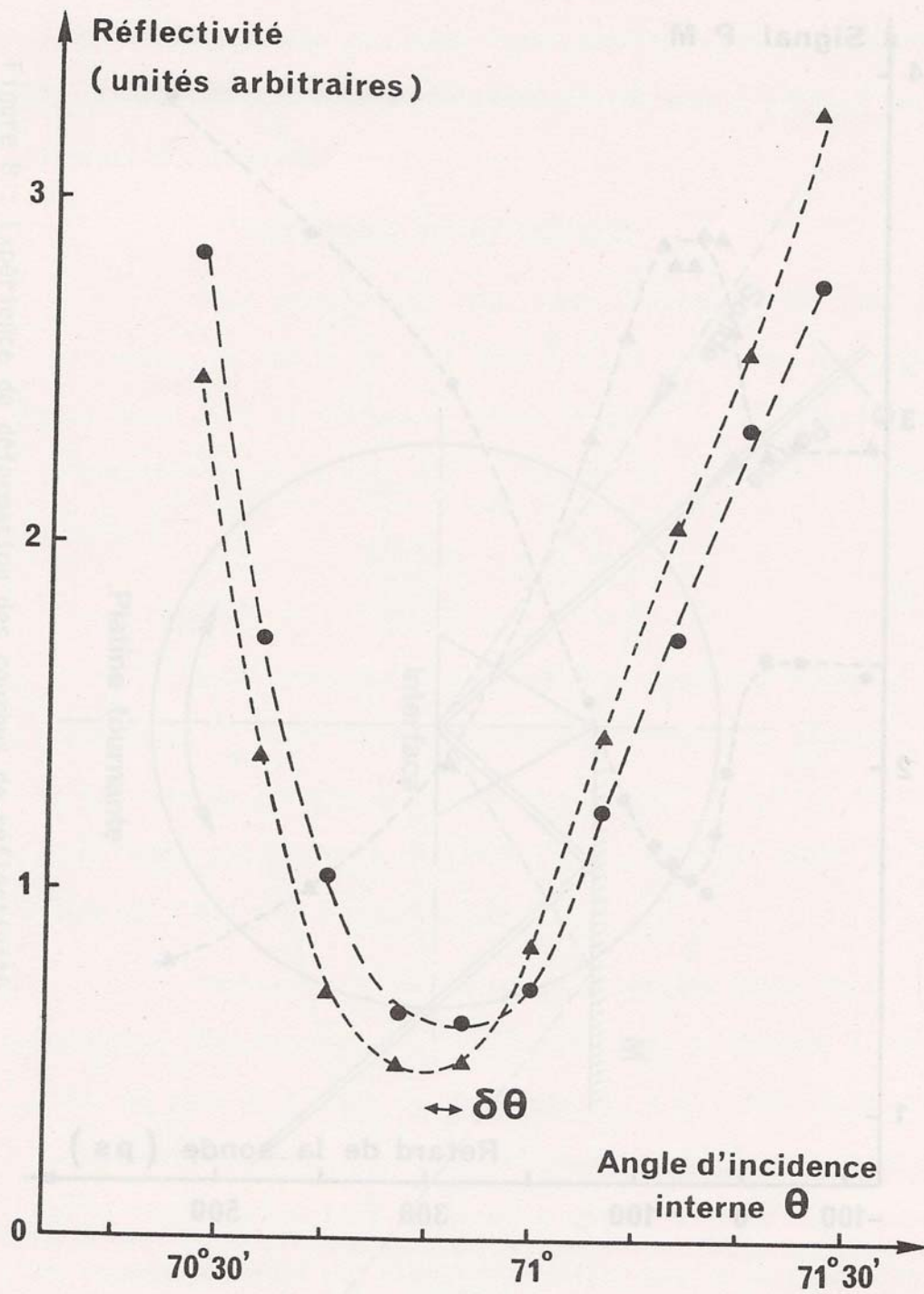


Figure 10 : Creux de la courbe de rélectivité.

Avec (●) et sans pompe (▲) pour un retard de sonde de 50 ps.

obturateur 0 (fig. 8) commandé par l'Apple permet d'enregistrer les tirs alternativement avec et sans pompe. Pour chaque point, on accumule sur 80 tirs laser. La courbe est réalisée en deux passages à angles croissants, afin de s'assurer de sa reproductibilité. Les fluctuations sur chaque point sont de l'ordre de 5 %. On observe donc bien une déformation de la courbe de réflectivité sous l'effet de la pompe. Le profil de la courbe étant presque parabolique, on a pu, avec une bonne précision ($\sim 5\%$), l'ajuster par moindres carrés à un polynôme du troisième degré; Ce qui permet de déterminer le décalage angulaire $\delta\theta^*$ de la résonance à haute énergie. On a obtenu $\delta\theta = + 3'$ dans ce cas.

On a refait ces expériences pour plusieurs systèmes :

B16 - Ag - Ethanol

B16 - Ag - Acetone

SF10 - Ag - Ethanol

SF10 - Ag - Benzène

SF10 - Ag - CCL 4

tous sondés à 6302 \AA et à 5616 \AA et avec des épaisseurs d'argent différentes (entre 400 et 600 \AA).

Dans tous les cas, on a observé qualitativement les mêmes variations qu'avec la fig.10, c'est-à-dire :

- Un déplacement aux "temps courts": $\delta\theta \approx + 5'$
- Un grand déplacement $\delta\theta$ négatif aux "temps longs" ($> 150 \text{ ps}$).
- Une variation de la réflectivité minimum dont le signe dépend plus de l'épaisseur d'argent que du système étudié.

* $\delta\theta$ est une variation d'angle d'incidence interne : $\delta\theta \approx \delta\theta_{\text{ext}} / n_p$

Nous avons fait la même expérience à l'interface Ag-air. Elle est plus difficile car, du fait de la faible incidence (pour un prisme en B 16, $\theta_{\text{air}} = 44^\circ 40'$ et $\theta_{\text{éthanol}} = 70^\circ 50'$), le film d'argent supporte moins d'énergie. Il se "pique" au-delà de $0,2 \text{ mJ}$ de pompe alors qu'au contact d'un liquide, il résiste bien à $0,5 \text{ mJ}$ (notre propos n'était pas d'étudier le recuit laser^(17,18)). On a pu néanmoins réaliser l'expérience en enregistrant des courbes du type de celle de la figure 10 à différents retards pompe-sonde, ce qui accroît considérablement la détectivité. Après ajustement par moindres carrés de $\delta\theta$, on a obtenu la courbe de la figure 11. Chaque point a été déterminé à partir de 9 angles différents autour de θ^{PS} . Les fluctuations importantes proviennent du faible écart angulaire, à la limite de la précision sur la rotation de la platine. On observe tout de même un effet notable $\delta\theta \approx 1'$ qui persiste dans le temps ($\sim 500 \text{ ps}$). Comme on a pu le vérifier, cet effet est bien reproductible.

Il apparaît donc, au vu de ces expériences, qu'une part importante de l'effet observé provient du métal.

b) Interprétation

Pour interpréter les variations de réflectivité dues à l'action de la pompe, il faut d'abord connaître l'effet d'un changement d'indice du métal ou du diélectrique sur la relation de dispersion des PS. Il ne peut y avoir d'effet notable dû au prisme car on ne focalise pas dedans et il n'absorbe pas la lumière. Il existe pour décrire ces effets, des modèles théoriques "exacts" prenant en compte les effets non linéaires intenses ou anisotropes (19- 21).

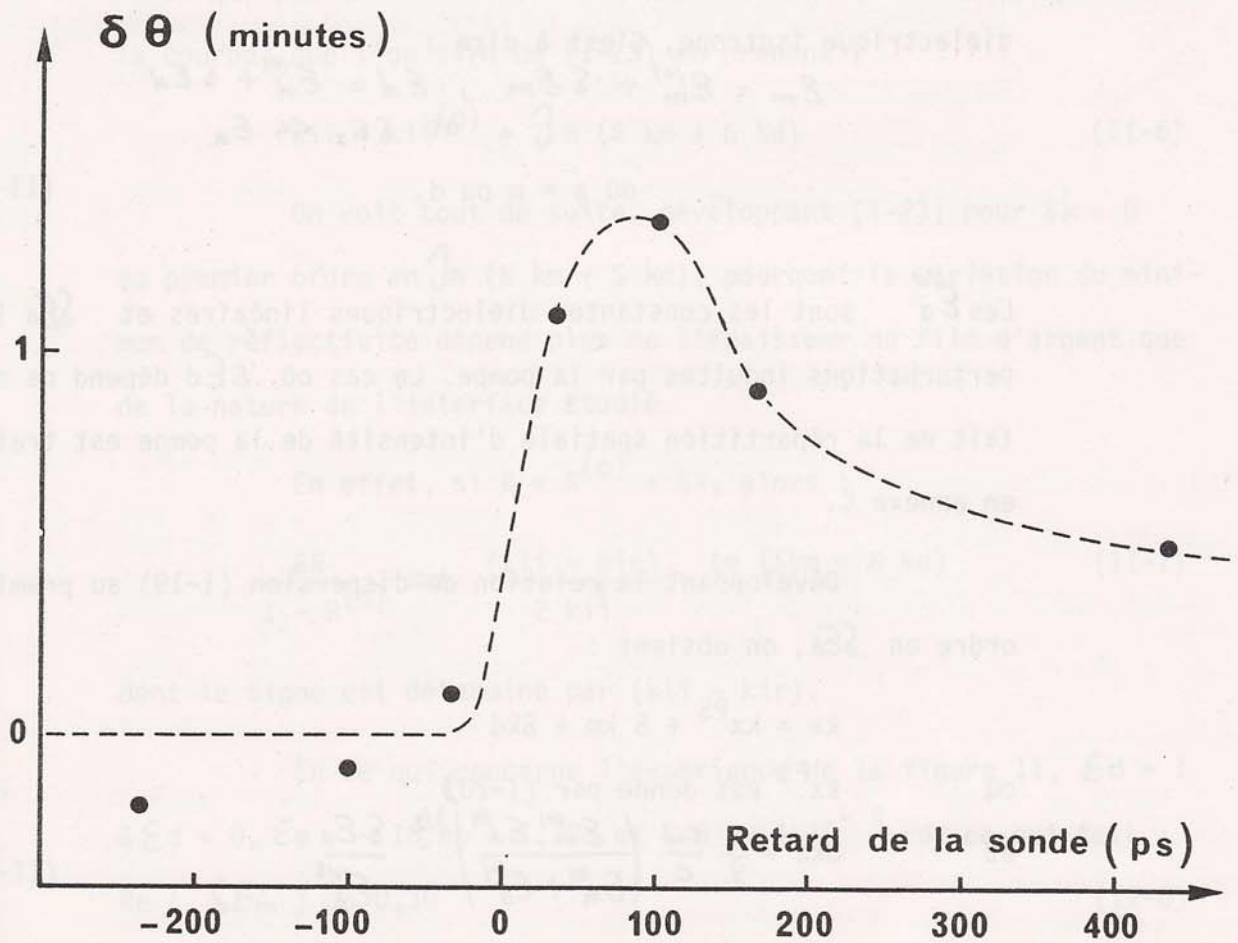


Figure 11 : Décalage $\delta\theta$ de la résonance plasmon en fonction du retard de la sonde pour un système SF 10 - Ag - air sondé à 6302 Å avec 0,2 mJ dans la pompe ($\theta^{PS} = 37^\circ 10'$).

Nous nous limitons ici à une perturbation de constante diélectrique isotrope. C'est à dire :

$$\epsilon_m = \epsilon_m^{(0)} + \delta \epsilon_m, \quad \epsilon_d = \epsilon_d^{(0)} + \delta \epsilon_d$$

et $\delta \epsilon_a \ll \epsilon_a$

$$\text{où } a = m \text{ ou } d. \quad (\text{II-3})$$

Les $\epsilon_a^{(0)}$ sont les constantes diélectriques linéaires et $\delta \epsilon_a$ les perturbations induites par la pompe. Le cas où $\delta \epsilon_d$ dépend de z du fait de la répartition spatiale d'intensité de la pompe est traité en annexe C.

Développant la relation de dispersion (I-19) au premier ordre en $\delta \epsilon_a$, on obtient :

$$kx = kx^{\text{PS}} + \delta k_m + \delta k_d$$

où kx^{PS} est donné par (I-20)

et
$$\delta k_a = \frac{1}{2} \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_m^{(0)} \epsilon_d^{(0)}}{\epsilon_m^{(0)} + \epsilon_d^{(0)}} \right)^{3/2} \frac{\delta \epsilon_a}{\epsilon_a^{(0)2}} \quad (\text{II-4})$$

On voit sur (II-4) que la relation de dispersion des PS est plus sensible aux perturbations du diélectrique (d) qu'à celles du métal (m.) En effet, si $\delta \epsilon_m = \delta \epsilon_d$, alors,

$$\frac{\delta k_d}{\delta k_m} = \frac{\epsilon_m^2}{\epsilon_d^2} \quad \text{et d'après (I-7), } \epsilon_m^2 > \epsilon_d^2.$$

(dans notre cas, $\epsilon_m^2 / \epsilon_d^2 \approx 10^2$).

La variation δk se traduit par un déplacement de la position du minimum de réflectivité d'un angle d'incidence sur la surface :

$$\delta \theta = \frac{1}{2} n_p^2 \sin^2 \theta \operatorname{tg} \theta \operatorname{Re} \left\{ \frac{\delta \epsilon_m}{\epsilon_m^2} + \frac{\delta \epsilon_d}{\epsilon_d^2} \right\}$$

où : $\theta = \theta^{\text{PS}} + \delta \theta,$ (II-5)

ainsi que par une variation du minimum de réflectivité (profondeur de la courbe) que l'on tire de (I-23) en prenant :

$$k_{ii} = k_{ii}^{(0)} + \Im_m (\delta k_m + \delta k_d) \quad (\text{II-6})$$

On voit tout de suite, développant (I-23) pour $\delta k = 0$ au premier ordre en $\Im_m (\delta k_m + \delta k_d)$, pourquoi la variation du minimum de réflectivité dépend plus de l'épaisseur du film d'argent que de la nature de l'interface étudiée.

En effet, si $R = R^{(0)} + \delta R$, alors :

$$\frac{\delta R}{1 - R^{(0)}} \approx \frac{(k_{ii} - k_{ir})}{2 k_{ii}} \Im_m (\delta k_m + \delta k_d) \quad (\text{II-7})$$

dont le signe est déterminé par $(k_{ii} - k_{ir})$.

En ce qui concerne l'expérience de la figure 11, $\epsilon_d = 1$, $\delta \epsilon_d = 0$, $\epsilon_m = -18$, $n_p = 1,728$ et $\delta \theta \approx 4 \cdot 10^{-4}$ rd; ce qui fait :

$$\text{Re} (\delta \epsilon_m) \approx 0,30 \quad (\text{II-8})$$

Cet effet, persistant plus de 400 ps, est trop long pour un effet Kerr du métal dû essentiellement aux électrons libres et durant moins de 1 ps ($\sim 10^{-15}$ s).

Il semble donc que ce soit un effet d'origine thermique. Si on l'assimile à de l'effet Kerr, on trouve alors :

$$\chi_{\text{eff}}^{(3)} = 2 \cdot 10^{-8} \text{ ues} \quad (\text{II-9})$$

avec

$$\delta \epsilon_m = 4 \pi \chi_{\text{eff}}^{(3)} |\vec{E}_m|^2 \quad *$$

$$|\vec{E}_m|^2 \approx 10 |\vec{E}_p|^2 \quad \text{et} \quad |\vec{E}_p|^2 = \frac{2 \pi}{n_p c} I_{\text{inc}}$$

C'est bien plus grand que ce que l'on calcule à partir d'un modèle d'électrons libres ⁽²²⁾ ($\chi_{\text{kerr}}^{(3)} = 4 \cdot 10^{-12}$ ues) ou que ce qui a été mesuré par génération de troisième harmonique à $1,06 \mu\text{m}$ ⁽²³⁾ ($\chi_{3\omega}^{(3)} = 1,5 \cdot 10^{-11}$ ues). Considérant d'autre part que toute l'énergie est

* Dans la réalité, $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ est deux fois plus grand, cf annexe C.

transformée en chaleur dans le métal (créneau de température de 3 mm de diamètre), on a un échauffement $\delta T \approx 230$ K,

$$\text{et on trouve : } \operatorname{Re}(\delta \epsilon_m) \approx 0,2 \quad (\text{II-10})$$

$$\text{où on a pris } -\ell \left(\frac{\delta \epsilon'_m}{\delta T} \right)_T = +13 \quad (\text{Annexe A})$$

$$\text{et } -\frac{1}{\ell} \left(\frac{\delta \ell}{\delta T} \right)_P = 5,7 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1} \quad (\text{Réf. 24})$$

ce qui est cohérent avec (II-8).

La variation d'indice observée est donc bien d'origine thermique (effet joule). En ce qui concerne $\mathcal{I}_m(\delta k_m)$ qui est relié à l'absorption induite du PS :

$$\mathcal{I}_m(\delta k_m) = k_{ii} \left(\frac{\delta \epsilon''_m}{\delta T} \right)_P \frac{\delta T}{\epsilon''_m} \quad (\text{II-10})$$

$$\text{où } \frac{1}{\epsilon''_m} \left(\frac{\delta \epsilon''_m}{\delta T} \right)_P \approx 10^{-3} \text{ K}^{-1} \quad (\text{Annexe A})$$

$$\text{ce qui fait } \frac{\mathcal{I}_m(\delta k_m)}{k_{ii}} \approx 0,2$$

On peut aussi interpréter la décroissance de $\delta \theta$ observée figure 11. Elle est due à la diffusion de la chaleur vers le prisme, conduisant au refroidissement du métal avec une dépendance temporelle asymptotique en $t^{-1/2}$.

Nous pouvons à ce niveau interpréter les expériences aux interfaces Ag - liquide. Il s'agit d'un effet thermique apparaissant dans le métal avec un retard d'environ 50 ps correspondant à l'intégration de l'impulsion, puis se propageant dans le diélectrique. L'effet aux temps courts (fig. 10) provient d'une variation d'indice du métal $\operatorname{Re}(\delta \epsilon_m) \approx 0,1$, comparable à l'effet observé à l'interface Ag-Air (II-8). Ce qui compte tenu des 0,5 mj de pompe et du facteur

d'exaltation $\left| \frac{\vec{E}_m^2}{E_p^2} \right| \approx 4$, donne une susceptibilité Kerreffective de Ag :

$$\chi^{(3)}_{\text{eff}} \approx 5.10^{-8} \text{ u e s}$$

plus grande que les effets non linéaires optiques attendus.

Si on attribuait l'effet observé aux temps courts au diélectrique, on aurait une susceptibilité Kerreffective du milieu

$$\chi^{(3)}_{\text{eff}} \approx 8.10^{-11} \text{ ues.}$$

Ce qui est environ 100 fois plus grand que les susceptibilités Kerr des liquides organiques utilisés (25,26). Les effets non linéaires optiques du diélectrique sont donc négligeables devant l'effet thermique, ce qui est confirmé aussi par le fait que le rapport entre l'effet observé et les constantes Kerr de la littérature (25) n'est pas respecté; d'autant plus que le tétrachlorure de carbone (CCl_4) donne un effet positif du même ordre de grandeur bien qu'il n'y ait pas de contribution orientationnelle à son effet Kerr (27) (c'est généralement la contribution dominante).

Nous avons contrôlé aussi qu'il ne pouvait s'agir ni d'électrostriction (28), ni d'une cascade de processus non linéaires du second ordre (29-30).

Comme il est dit plus haut, la variation d'indice négative observée aux temps supérieurs à 150 ps (fig. 9), est due à la dilatation du liquide consécutive à son échauffement δT , dont l'effet interfère avec celui du métal (II-5), tandis que ce dernier se refroidit.

Cette dilatation conduit à un $\delta \epsilon_d$ négatif car :

$$\delta \epsilon_d \approx \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_T \left(\frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_P \delta T \quad (\text{II-12})$$

$$\text{et } \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_T \left(\frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_P = -1,2 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$$

pour l'éthanol (31)(24)

Elle se propage à la vitesse du son ($v = 1200\text{m/s}$), ce qui donne un temps caractéristique $t = 1/\alpha v = 180\text{ps}$ pour la variation du signal ($\alpha^{-1} = 2200 \text{ \AA}$ est la profondeur de pénétration du champ du PS sonde dans l'éthanol). C'est bien ce que l'on observe figure 9.

Pour conclure, il faut noter que c'est grâce aux impulsions picosecondes que l'on a pu séparer l'effet thermique aux temps courts dans le métal de celui aux temps longs dans le diélectrique.

Il faut noter aussi que l'effet Kerr est observable avec des PS pour certains diélectriques fortement non linéaires tels que les semi-conducteurs ⁽³²⁾ dont $\chi^{(3)} \approx 10^{-8}$ ues donnerait un effet environ 100 fois plus grand que l'effet thermique observé.

REFERENCES DU CHAPITRE II

- 1) W. KOECHNER :
"Solid State Laser Engineering", Springer-Verlag, (76)
- 2) G.H.C. NEW : Rep. Prog. Phys. 46, 877 (83)
- 3) A. PENZKOFER et N. WEINHARDT :
Dans "Picosecond Phenomena", Tome III, édité par
K.B. EISENTHAL, R.M. HOCHSTRASSER, W. KAISER et A. LAUBEREAU,
Springer-Verlag (82), page 36.
- 4) J. CHESNOY :
Thèse de Doctorat es Sciences, Orsay, Mars 84.
- 5) M.A. DUGUAY, J.W. HANSEN, S.L. SHAPIRO :
IEEE.J. Qu.E1 , QE 11, 725, (70)
- 6) H. KOGELNIK et T. LI :
Appl. Opt., 5, 1550, (66)
- 7) D.H. AUSTON :
dans "Ultrashort light pulses", édité par S.L. SHAPIRO,
Springer-Verlag, (77), page 154.
- 8) Catalogue SCHOTT :
"Color Filter Glass", réf : 3531/4e.
- 9) M.J. COLLES :
Opt. Com. 1, 169, (69)
- 10) P. PASCAL :
"Nouveau traité de chimie minérale", Tome III, Masson et Cie,
(57), page 447
- 11) P.B. JOHNSON et R.W. CHRISTY :
Phys.rev. B, 6, 4370, (72)
- 12) C.K. CHEN :
P.H.D. Thesis, Berkeley, (80).

- 13) Catalogue SCHOTT :
"Verres Schott", réf. 3111 f. 1e B 16 est aussi no mé BK7.
- 14) P. ROUARD et A. MESSEN :
dans "Progress in Optics", Vol 15, édité par E. WOLF, p. 79
- 15) A.J. BRAUNDMIEIER Jr. et D.G. HALL :
surf-Sci, 49, 376, (75)
- 16) F. ABELES et T. LOPEZ-RIOS :
dans "Polaritons" édité par E. BURSTEIN et F. de MARTINI,
Pergamon Press, (72) page 241.
- 17) N. BLOEMBERGEN :
IEEE J.Q.E., 10, 375, (74)
- 18) J.M. POATE et W.L. BROWN :
Phys. Today 35, 24 juin (82).
- 19) N.N. AKHMEDIEV :
Sov.phys. JETP, 57, 1111, (83)
- 20) M.Y. Y U : Phys.rev. A, 28, 1855, (83)
- 21) V.M. AGRANOVICH et V. Ya CHERNYAK :
Sol. Stat.com , 44, 1309 (82)
- 22) K. UJIHARA :
Opt.Com, 43, 225 (82)
- 23) W.K. BURNS et N. BLOEMBERGEN :
Phys.rev.B, 4, 3437, (71).
- 24) AMERICAN INSTITUTE OF PHYSICS HANDBOOK :
3e éd., Mc Graw Hill, (72)
- 25) P.P. HO et R.R. ALFANO :
Phys.rev. A, 20, 2170 (79)
- 26) G.R. MEREDITH, B. BUCHALTER et C. HANZLIK :
J. Chem.Phys., 78, 1543 (83) ,génération de 3e harmonique à
1,91 μ m.

- 27) R.W. HELLWARTH :
Prog.Quant.Electr. 5, 1, (77)
- 28) Y.R. SHEN :
Phys.lett. 20, 378, (66)
- 29) G.R. MEREDITH :
Phys.rev. B, 24, 5522, (81)
- 30) E. YABLONOVITCH, C. FLYTZANIS et N. BLOEMBERGEN :
Phys.rev.lett, 29, 865, (72)
- 31) C.J.F. BOTTCHER et P. BORDEWIJK :
"Theory of electric polarisation", Vol 2, Elsevier, (79),
page 285, Relation de Clausius-Mossoti.
- 32) Y.J. CHEN et G.M. CARTER :
Appl.phys.lett., 41, 307, (82).

Project: (30)001-04

501-503, 514-515, 525-526, 537-538, 549-550, 561-562, 573-574, 585-586, 597-598, 609-610, 621-622, 633-634, 645-646, 657-658, 669-670, 681-682, 693-694, 705-706, 717-718, 729-730, 741-742, 753-754, 765-766, 777-778, 789-790, 801-802, 813-814, 825-826, 837-838, 849-850, 861-862, 873-874, 885-886, 897-898, 909-910, 921-922, 933-934, 945-946, 957-958, 969-970, 981-982, 993-994, 1005-1006, 1017-1018, 1029-1030, 1041-1042, 1053-1054, 1065-1066, 1077-1078, 1089-1090, 1101-1102, 1113-1114, 1125-1126, 1137-1138, 1149-1150, 1161-1162, 1173-1174, 1185-1186, 1197-1198, 1209-1210, 1221-1222, 1233-1234, 1245-1246, 1257-1258, 1269-1270, 1281-1282, 1293-1294, 1305-1306, 1317-1318, 1329-1330, 1341-1342, 1353-1354, 1365-1366, 1377-1378, 1389-1390, 1401-1402, 1413-1414, 1425-1426, 1437-1438, 1449-1450, 1461-1462, 1473-1474, 1485-1486, 1497-1498, 1509-1510, 1521-1522, 1533-1534, 1545-1546, 1557-1558, 1569-1570, 1581-1582, 1593-1594, 1605-1606, 1617-1618, 1629-1630, 1641-1642, 1653-1654, 1665-1666, 1677-1678, 1689-1690, 1701-1702, 1713-1714, 1725-1726, 1737-1738, 1749-1750, 1761-1762, 1773-1774, 1785-1786, 1797-1798, 1809-1810, 1821-1822, 1833-1834, 1845-1846, 1857-1858, 1869-1870, 1881-1882, 1893-1894, 1905-1906, 1917-1918, 1929-1930, 1941-1942, 1953-1954, 1965-1966, 1977-1978, 1989-1990, 2001-2002, 2013-2014, 2025-2026, 2037-2038, 2049-2050, 2061-2062, 2073-2074, 2085-2086, 2097-2098, 2109-2110, 2121-2122, 2133-2134, 2145-2146, 2157-2158, 2169-2170, 2181-2182, 2193-2194, 2205-2206, 2217-2218, 2229-2230, 2241-2242, 2253-2254, 2265-2266, 2277-2278, 2289-2290, 2301-2302, 2313-2314, 2325-2326, 2337-2338, 2349-2350, 2361-2362, 2373-2374, 2385-2386, 2397-2398, 2409-2410, 2421-2422, 2433-2434, 2445-2446, 2457-2458, 2469-2470, 2481-2482, 2493-2494, 2505-2506, 2517-2518, 2529-2530, 2541-2542, 2553-2554, 2565-2566, 2577-2578, 2589-2590, 2601-2602, 2613-2614, 2625-2626, 2637-2638, 2649-2650, 2661-2662, 2673-2674, 2685-2686, 2697-2698, 2709-2710, 2721-2722, 2733-2734, 2745-2746, 2757-2758, 2769-2770, 2781-2782, 2793-2794, 2805-2806, 2817-2818, 2829-2830, 2841-2842, 2853-2854, 2865-2866, 2877-2878, 2889-2890, 2901-2902, 2913-2914, 2925-2926, 2937-2938, 2949-2950, 2961-2962, 2973-2974, 2985-2986, 2997-2998, 3009-3010, 3021-3022, 3033-3034, 3045-3046, 3057-3058, 3069-3070, 3081-3082, 3093-3094, 3105-3106, 3117-3118, 3129-3130, 3141-3142, 3153-3154, 3165-3166, 3177-3178, 3189-3190, 3201-3202, 3213-3214, 3225-3226, 3237-3238, 3249-3250, 3261-3262, 3273-3274, 3285-3286, 3297-3298, 3309-3310, 3321-3322, 3333-3334, 3345-3346, 3357-3358, 3369-3370, 3381-3382, 3393-3394, 3405-3406, 3417-3418, 3429-3430, 3441-3442, 3453-3454, 3465-3466, 3477-3478, 3489-3490, 3501-3502, 3513-3514, 3525-3526, 3537-3538, 3549-3550, 3561-3562, 3573-3574, 3585-3586, 3597-3598, 3609-3610, 3621-3622, 3633-3634, 3645-3646, 3657-3658, 3669-3670, 3681-3682, 3693-3694, 3705-3706, 3717-3718, 3729-3730, 3741-3742, 3753-3754, 3765-3766, 3777-3778, 3789-3790, 3801-3802, 3813-3814, 3825-3826, 3837-3838, 3849-3850, 3861-3862, 3873-3874, 3885-3886, 3897-3898, 3909-3910, 3921-3922, 3933-3934, 3945-3946, 3957-3958, 3969-3970, 3981-3982, 3993-3994, 4005-4006, 4017-4018, 4029-4030, 4041-4042, 4053-4054, 4065-4066, 4077-4078, 4089-4090, 4101-4102, 4113-4114, 4125-4126, 4137-4138, 4149-4150, 4161-4162, 4173-4174, 4185-4186, 4197-4198, 4209-4210, 4221-4222, 4233-4234, 4245-4246, 4257-4258, 4269-4270, 4281-4282, 4293-4294, 4305-4306, 4317-4318, 4329-4330, 4341-4342, 4353-4354, 4365-4366, 4377-4378, 4389-4390, 4401-4402, 4413-4414, 4425-4426, 4437-4438, 4449-4450, 4461-4462, 4473-4474, 4485-4486, 4497-4498, 4509-4510, 4521-4522, 4533-4534, 4545-4546, 4557-4558, 4569-4570, 4581-4582, 4593-4594, 4605-4606, 4617-4618, 4629-4630, 4641-4642, 4653-4654, 4665-4666, 4677-4678, 4689-4690, 4701-4702, 4713-4714, 4725-4726, 4737-4738, 4749-4750, 4761-4762, 4773-4774, 4785-4786, 4797-4798, 4809-4810, 4821-4822, 4833-4834, 4845-4846, 4857-4858, 4869-4870, 4881-4882, 4893-4894, 4905-4906, 4917-4918, 4929-4930, 4941-4942, 4953-4954, 4965-4966, 4977-4978, 4989-4990, 5001-5002, 5013-5014, 5025-5026, 5037-5038, 5049-5050

— : — : — : — : — : — : — : — : — :

I.- INTRODUCTION

La conjugaison de phase est un processus non linéaire du troisième ordre lors duquel une onde appelée sonde (S) est réfléchiée par son interaction dans un milieu non linéaire avec deux ondes pompes (P + et P-) se propageant en sens inverse l'une de l'autre (fig.1). Idéalement, les trois ondes ont même fréquence ω , conduisant à une onde conjuguée (C) à la fréquence ω . Ce processus avec accord de phase est aussi connu sous le nom de mélange à quatre ondes dégénéré⁽¹⁾ (DFWM).

La conjugaison de phase a été observée et interprétée pour la première fois en diffusion Brillouin stimulée par Zeldovich et Al.⁽²⁾ Elle a été étudiée ensuite en configuration dégénérée par Hellwarth en 1977⁽³⁾. Elle est à l'heure actuelle bien connue pour les ondes de volume⁽⁴⁾.

Le principe de la conjugaison de phase peut se comprendre simplement dans le cadre de l'optique non linéaire. Considérons deux ondes planes (les pompes) à la fréquence ω , se propageant en sens opposés suivant l'axe Ox dans un milieu non linéaire isotrope et centrosymétrique; leurs champs électriques s'écrivent respectivement :

$$\begin{aligned}\vec{E}_{p+} &= \hat{y} A_{p+} e^{ikx - i\omega t} + c.c. \\ \vec{E}_{p-} &= \hat{y} A_{p-} e^{-ikx - i\omega t} + c.c.\end{aligned}\quad (\text{III-1})$$

où A_{p+} et A_{p-} sont les amplitudes et \hat{y} est le vecteur unitaire normal au plan de la figure 1.

Un autre faisceau (la sonde) de même fréquence ω et d'amplitude moindre A_s , est incident sur le même milieu, suivant une autre direction Oz; son champ électrique s'écrit :

$$\vec{E}_s = \hat{z} A_s e^{ikx - i\omega t} + c.c.\quad (\text{III-2})$$

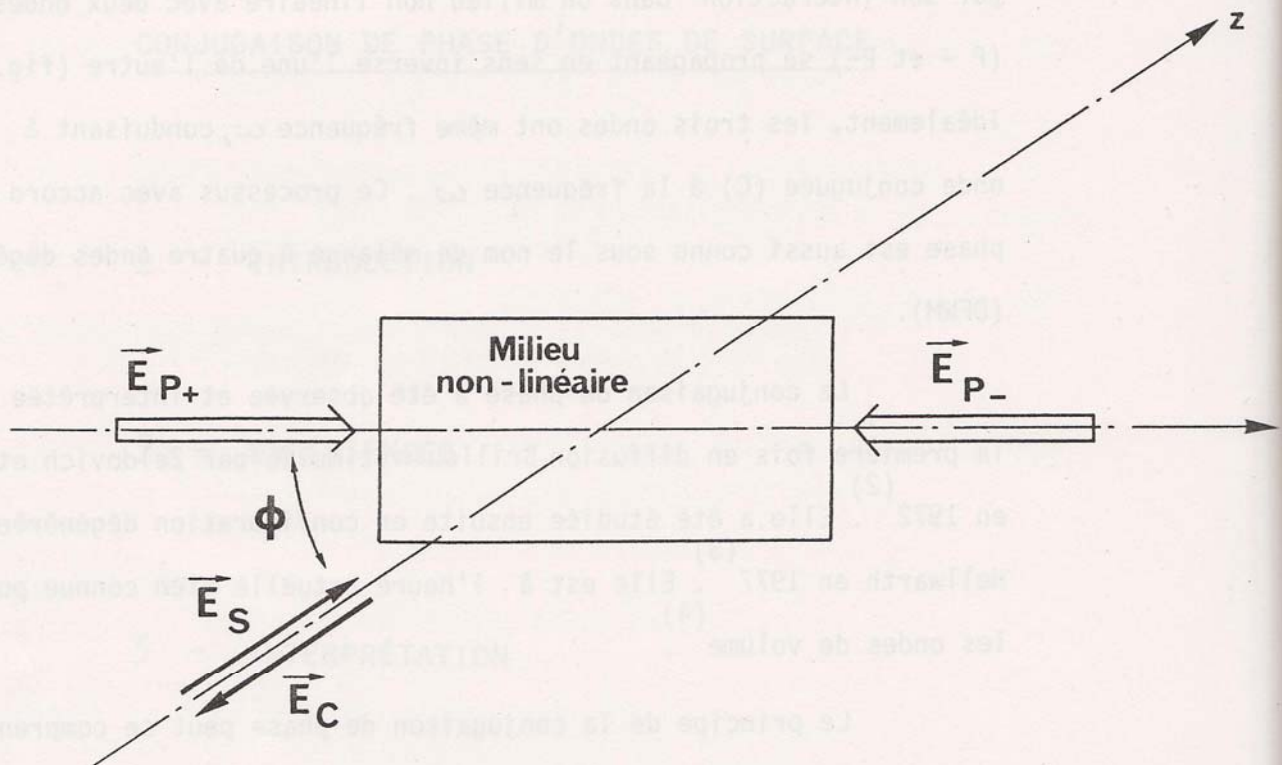


Figure 1 : Géométrie de la conjugaison de phase.

La polarisation non linéaire du troisième ordre P^{NL} (cf. I-26) contient, entre autres, un terme induit par les trois faisceaux P_+ , P_- et S et qui oscille à la fréquence ω ; c'est le terme :

$$P^{NL} = \chi^{(3)}(\omega, \omega, -\omega) A_{p+} A_{p-} A_s^* e^{-ikz - i\omega t + cc} \quad (III-3)$$

Cette polarisation induite est la source d'une onde se propageant le long de l'axe Oz en sens opposé à l'onde sonde ; c'est la direction où l'adaptation de phase est automatiquement satisfaite. De plus, l'amplitude A_c de cette onde est proportionnelle à A_s ; l'onde rayonnée est donc bien conjuguée de phase de l'onde sonde. Cette conjugaison équivaut à une opération de changement du signe du temps pour la sonde.

L'ensemble du milieu non linéaire et des deux pompes constitue un miroir pour la sonde. Il est radicalement différent d'un miroir classique : le miroir "conjugueur" réfléchit dans la même direction alors qu'à l'exception de l'incidence normale, un miroir classique ne réfléchit jamais dans la même direction. La propriété la plus remarquable des miroirs conjugueurs est qu'une onde ayant subi une déformation de son plan d'onde à la traversée d'un milieu transparent voit son plan d'onde restauré après conjugaison et nouvelle traversée de ce même milieu "déformant". Cette propriété est utilisée en optique adaptative pour corriger les aberrations ⁽⁵⁾. De plus, pour de fortes non linéarités, il peut y avoir amplification de la sonde transmise et réflexion avec des rendements (ou taux) de conjugaison $R_c = \left| A_c / A_s \right|^2$ supérieurs à l'unité.

Pour les milieux isotropes, on peut considérer que le signal conjugué est la somme de trois termes ⁽⁷⁾. Les deux premiers,

qui lui ont valu le nom d'holographie en temps réel, correspondent à la diffraction par un réseau : E_{p+} et E_{ps} interfèrent pour créer un réseau d'indice de pas large :

$$\Lambda_+ = \frac{2 \pi / k}{2 \sin \varphi / 2} \quad * \quad (\text{III-4})$$

qui diffracte la pompe E_{p-} dans le premier ordre (fig. 2a).

E_{p-} et E_s interfèrent pour créer un autre réseau de pas étroit:

$$\Lambda_- = \frac{2 \pi / k}{2 \cos \varphi / 2} \quad (\text{III-5})$$

qui diffracte E_{p+} (fig. 2b).

Le troisième terme correspond à un indice non linéaire, sans modulation spatiale, oscillant à la fréquence 2ω et n'a pas d'équivalent holographique.

Dans le cas où les non linéarités sont d'origine thermique, on s'attend à ce que la contribution du troisième terme soit négligeable car il est moyenné dans le temps (la durée τ de l'impulsion est grande devant $1/2\omega$). On peut par contre s'attendre à un effet important de la part des termes holographiques ⁽⁸⁾ (réseaux statiques).

La conjugaison de phase par des non linéarités d'origine thermique est un cas particulier de diffusion Rayleigh forcée ⁽⁹⁾ et elle a déjà été étudiée en détail pour les ondes de volume ⁽¹⁰⁾.

En ce qui concerne les ondes de surface et pour des non linéarités d'origine optique, Ujihara a estimé par le calcul le signal conjugué

(*) φ est l'angle entre les directions de propagation de P_+ et de S .

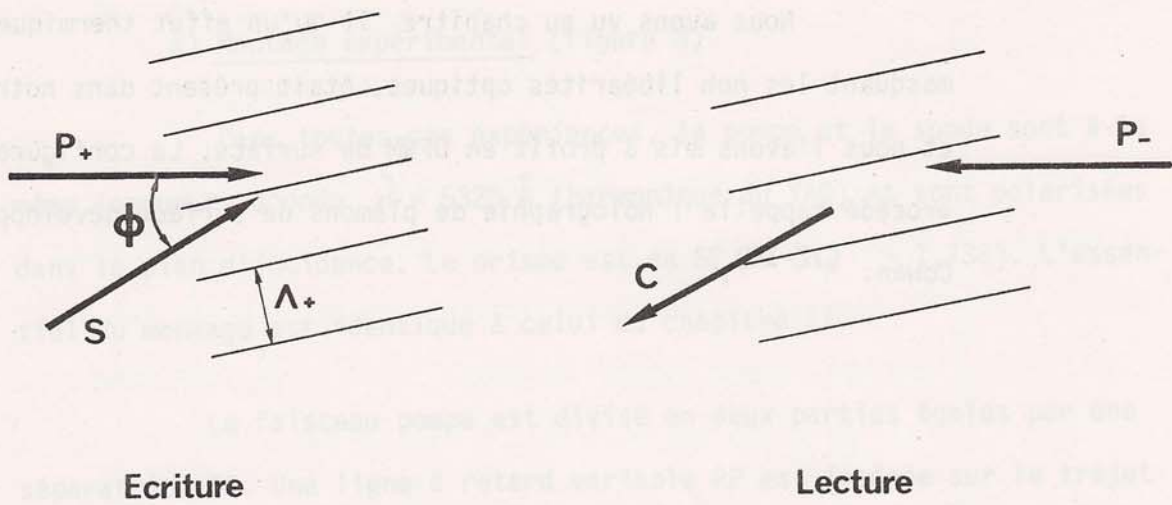


Figure 2 a : Réseau de pas large

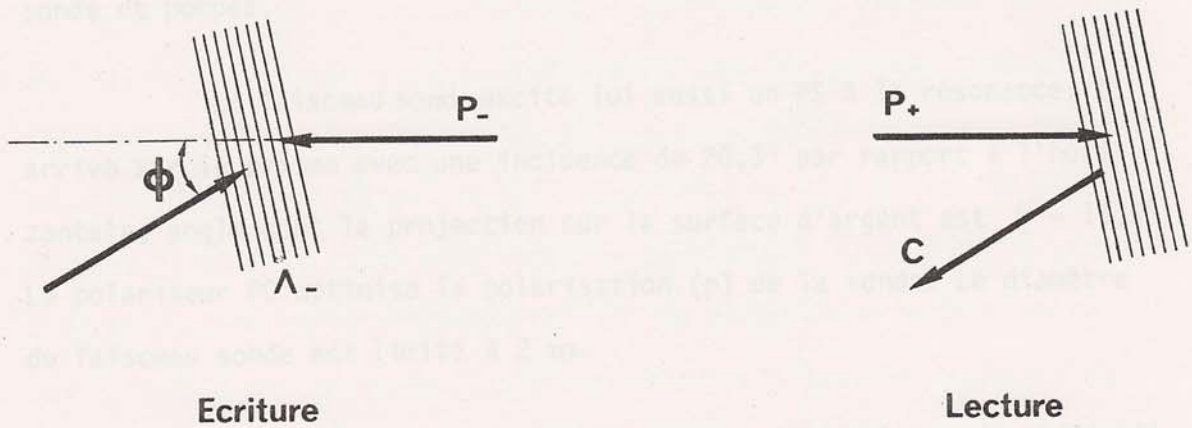


Figure 2 b : Réseau de pas étroit

auquel on pouvait s'attendre dans différentes configurations expérimentales (11).

Nous avons vu au chapitre II qu'un effet thermique important, masquant les non linéarités optiques, était présent dans notre système et nous l'avons mis à profit en DFWM de surface. La configuration de ce procédé rappelle l'holographie de plamons de surface développée par Cowan. (12-14).

2.- EXPERIENCES

a) Montage expérimental (figure 3)

Dans toutes ces expériences, la pompe et la sonde sont à la même longueur d'onde $\lambda = 5320 \text{ \AA}$ (harmonique du YAG) et sont polarisées dans le plan d'incidence. Le prisme est en SF 10 ($n_p = 1,738$). L'essentiel du montage est identique à celui du chapitre II.

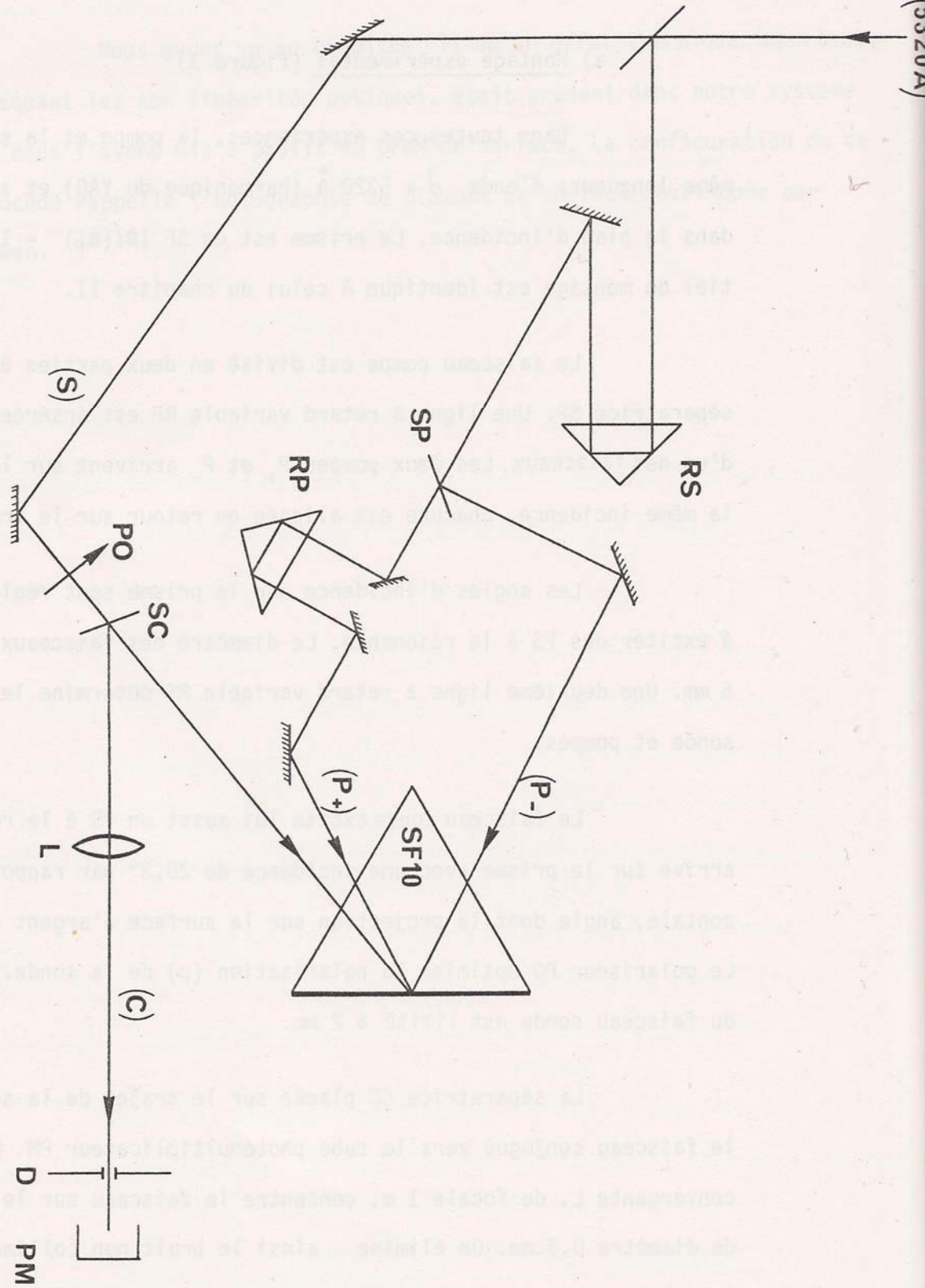
Le faisceau pompe est divisé en deux parties égales par une séparatrice SP. Une ligne à retard variable RP est insérée sur le trajet d'un des faisceaux. Les deux pompes P_+ et P_- arrivent sur le prisme sous la même incidence, chacune est alignée en retour sur le trajet de l'autre.

Les angles d'incidence sur le prisme sont réglés de façon à exciter des PS à la résonance. Le diamètre des faisceaux pompes est de 5 mm. Une deuxième ligne à retard variable RS détermine le retard entre sonde et pompes.

Le faisceau sonde excite lui aussi un PS à la résonance. Il arrive sur le prisme avec une incidence de $20,3^\circ$ par rapport à l'horizontale, angle dont la projection sur la surface d'argent est $\varphi = 11,5^\circ$. Le polariseur P0 optimise la polarisation (p) de la sonde. Le diamètre du faisceau sonde est limité à 2 mm.

La séparatrice SC placée sur le trajet de la sonde réfléchit le faisceau conjugué vers le tube photomultiplicateur PM. La lentille convergente L, de focale 1 m, concentre le faisceau sur le diaphragme D, de diamètre 0,5 mm. On élimine ainsi le bruit non collimaté comme la sonde. On aligne ce dispositif de détection en plaçant entre le prisme et SC, un miroir qui réfléchit la sonde en sens inverse, dans la direction du faisceau conjugué.

Figure 3 : Montage de conjugaison de phase de PS



Pour l'acquisition des données, on procède comme au chapitre II. On arrive avec ce système à détecter le signal conjugué de phase de la sonde.

b) Interface argent-air

Nous avons d'abord étudié un interface Ag-air avec 0,1 mJ d'énergie par pompe et 0,01 mJ pour la sonde (expérience 1). Optimisant le signal en fonction des retards pompes et sonde, nous obtenons un taux de conjugaison $R_c \approx 8 \cdot 10^{-5}$ avec un rapport signal sur bruit supérieur à 100. Le signal est visible à l'oeil nu sur un écran blanc.

Nous avons vérifié la dépendance cubique du signal conjugué en fonction de l'intensité du faisceau à 5320 \AA , ce qui est bien caractéristique d'un processus du troisième ordre. Nous avons donc, par la suite, étudié le signal normalisé sur le cube de la sonde.

Insérant une lentille convergente de focale 1 m sur le trajet de la sonde, entre SC et le prisme (la divergence du faisceau est alors de $3'$), à 10 cm du prisme, nous constatons que le faisceau conjugué focalise toujours au même endroit sur le diaphragme. Nous avons donc bien reconstruction de l'image, ce qui caractérise la conjugaison de phase. Nous avons utilisé cette même lentille pour varier l'angle de la sonde de part et d'autre de la résonance du P S. Un déplacement latéral de la lentille de 1 mm correspond à une variation de l'angle d'incidence dans le prisme de $2'$ par rapport à la configuration de référence. On peut déplacer la lentille de 1 cm de part et d'autre de la sonde sans modifier appréciablement ni la superposition des faisceaux ni leurs retards. Au cours de ce déplacement latéral de $\pm 1 \text{ cm}$ (variation d'incidence de $\pm 20'$) nous avons constaté que le signal restait pratiquement constant.

Nous avons ensuite travaillé à angles constants et retards variables. Quand nous retardons la sonde ou bien la pompe P_+ , les deux autres faisceaux coïncidant, le signal s'étend sur une faible plage de temps (figure 4). La courbe est symétrique et sa largeur à mi-hauteur est d'environ 17 ps.

Quand nous retardons la pompe P_- , l'évolution du signal change (fig. 5). Il commence par croître en environ 40 ps puis décroît avec une "constante de temps" d'environ 300 ps pendant ~ 400 ps. Au-delà, il décroît plus rapidement, avec une constante de temps apparente de 100 ps. Pour parvenir à des retards supérieurs à 200 ps, nous avons dû rajouter des barreaux de verre B16 parallèles sur le trajet de la pompe P_- et tenir compte des pertes par réflectivité introduites.

c) Interface argent-éthanol

Nous avons réalisé les mêmes expériences à un interface Ag - Ethanol avec 0,2 mJ par pompe et 0,02 mJ dans la sonde (expérience 2). Seuls changent ici les angles d'incidence des faisceaux sur la surface. L'angle de résonance PS est maintenant de $58,3^\circ$ au lieu de $37,2^\circ$ pour l'expérience 1. Le taux de conjugaison R_c est de $4 \cdot 10^{-4}$.

Pour toutes les expériences, les résultats sont les mêmes qu'au paragraphe précédent, excepté lorsqu'on retarde uniquement la pompe P_- . Nous avons réalisé cette expérience comme au paragraphe précédent et nous observons (fig. 6) que le signal croît toujours en 40 ps mais qu'il décroît plus rapidement, disparaissant presque en 100 ps. Il se remet ensuite à croître pendant ~ 400 ps jusqu'à une valeur plusieurs fois supérieure au pic initial. Pour des raisons pratiques évidentes, il n'a pas été possible de prolonger le retard au-delà de 650 ps.

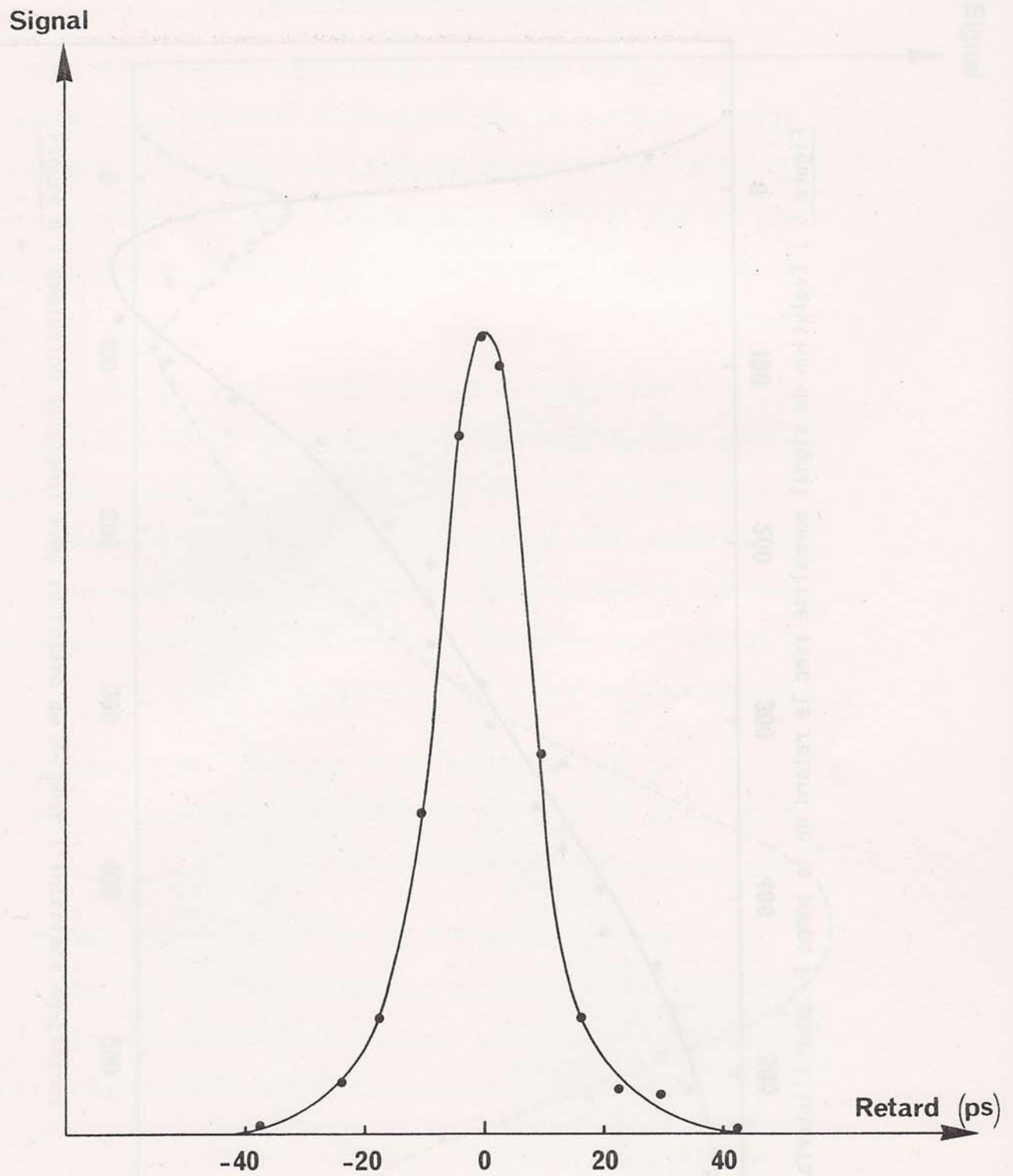
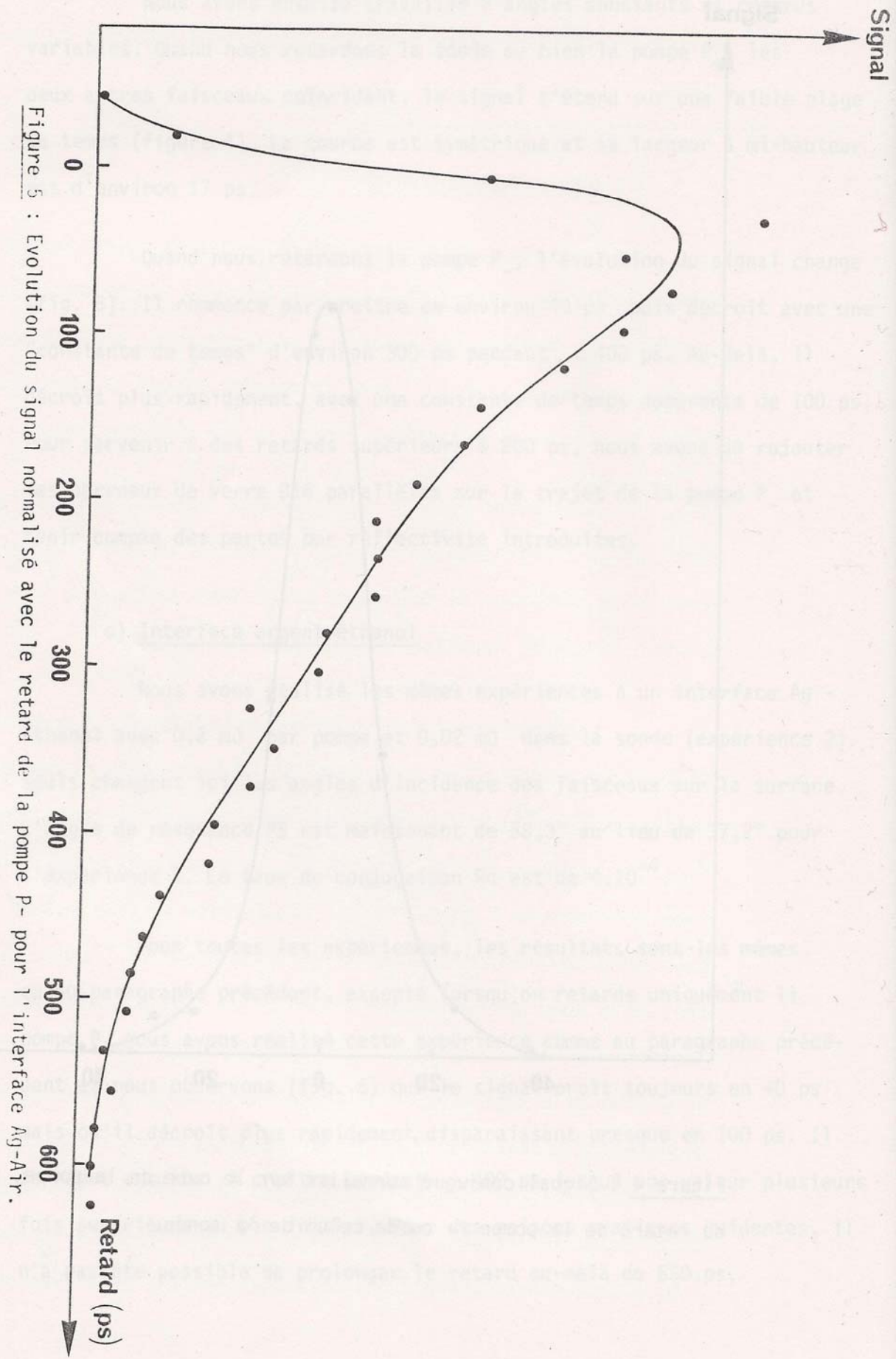


Figure 4 : Signal conjugué normalisé sur le cube de la pompe, en fonction du retard de la pompe P+ ou de celui de la sonde.



Signal

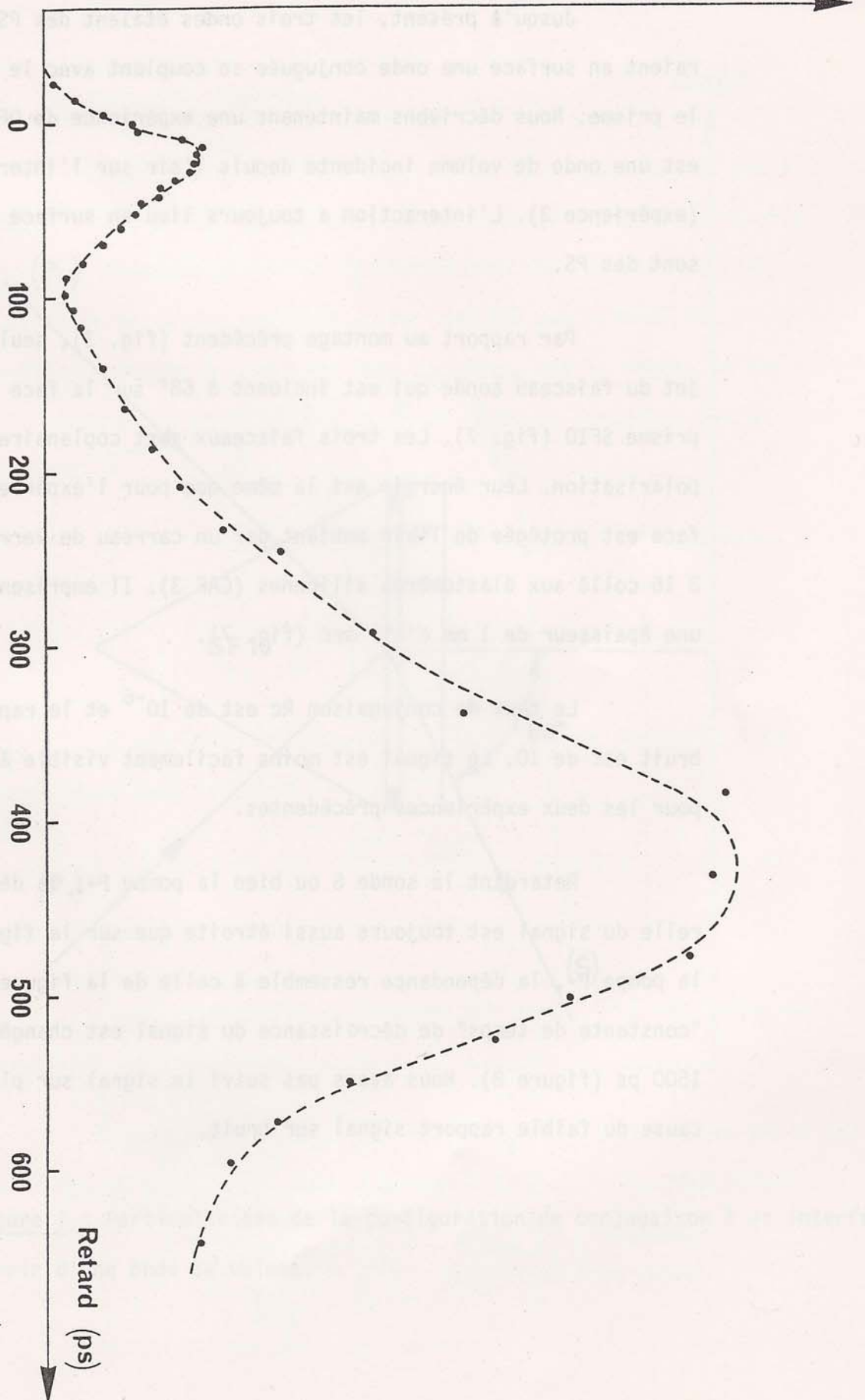


Figure 6 : évolution du signal avec le retard de P- pour l'interface Ag-Ethanol

d) Conjugaison d'une onde de volume

Jusqu'à présent, les trois ondes étaient des PS. Elles génèrent en surface une onde conjuguée se couplant avec le volume à travers le prisme. Nous décrivons maintenant une expérience de DFWM où la sonde est une onde de volume incidente depuis l'air sur l'interface Ag-air (expérience 3). L'interaction a toujours lieu en surface car les pompes sont des PS.

Par rapport au montage précédent (fig. 3), seul change le trajet du faisceau sonde qui est incident à 68° sur la face arrière du prisme SF10 (fig. 7). Les trois faisceaux sont coplanaires et ont même polarisation. Leur énergie est la même que pour l'expérience 1. La surface est protégée de l'air ambiant par un carreau de verre V parallèle en B 16 collé aux élastomères silicones (CAF 3). Il emprisonne contre l'argon une épaisseur de 1 mm d'air sec (fig. 7).

Le taux de conjugaison R_c est de 10^{-6} et le rapport signal sur bruit est de 10. Le signal est moins facilement visible à l'oeil nu que pour les deux expériences précédentes.

Retardant la sonde S ou bien la pompe P+, la dépendance temporelle du signal est toujours aussi étroite que sur la figure 4. Retardant la pompe P-, la dépendance ressemble à celle de la figure 5, seule la "constante de temps" de décroissance du signal est changée et vaut environ 1500 ps (figure 8). Nous avons pas suivi le signal sur plus de 300 ps à cause du faible rapport signal sur bruit.

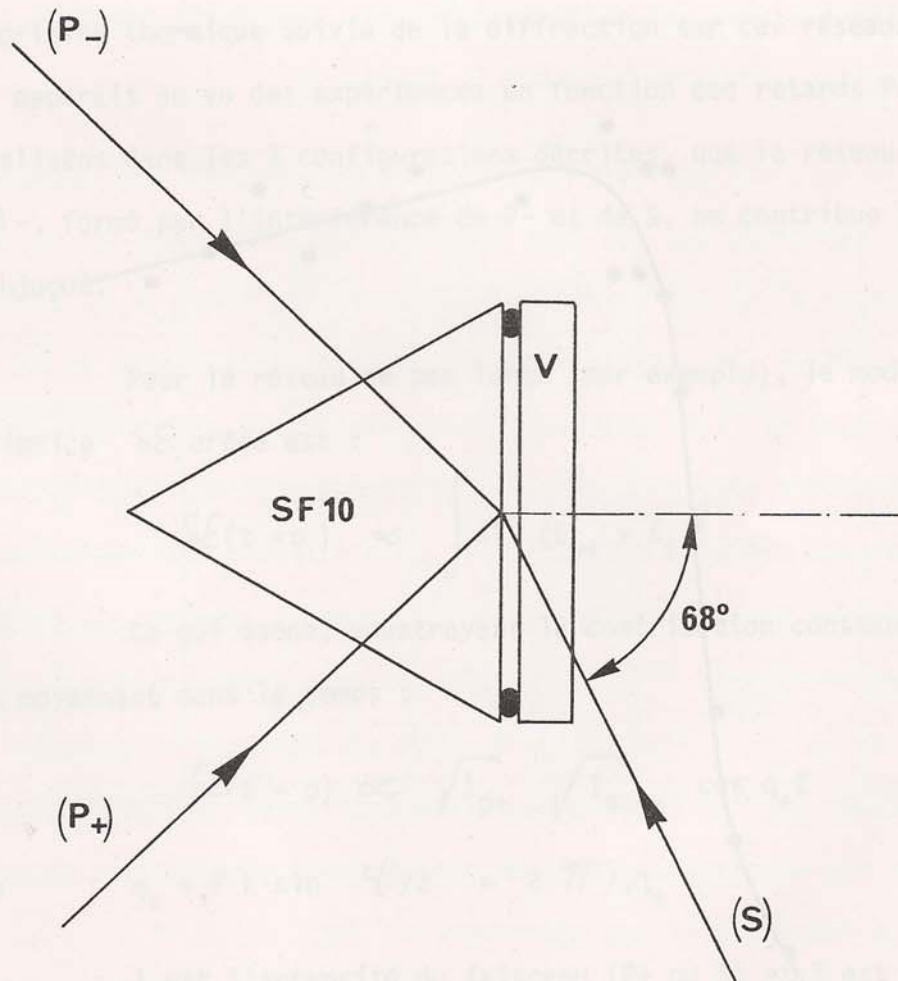


Figure 7 : Particularités de la configuration de conjugaison à un interface Ag-air d'une onde de volume.

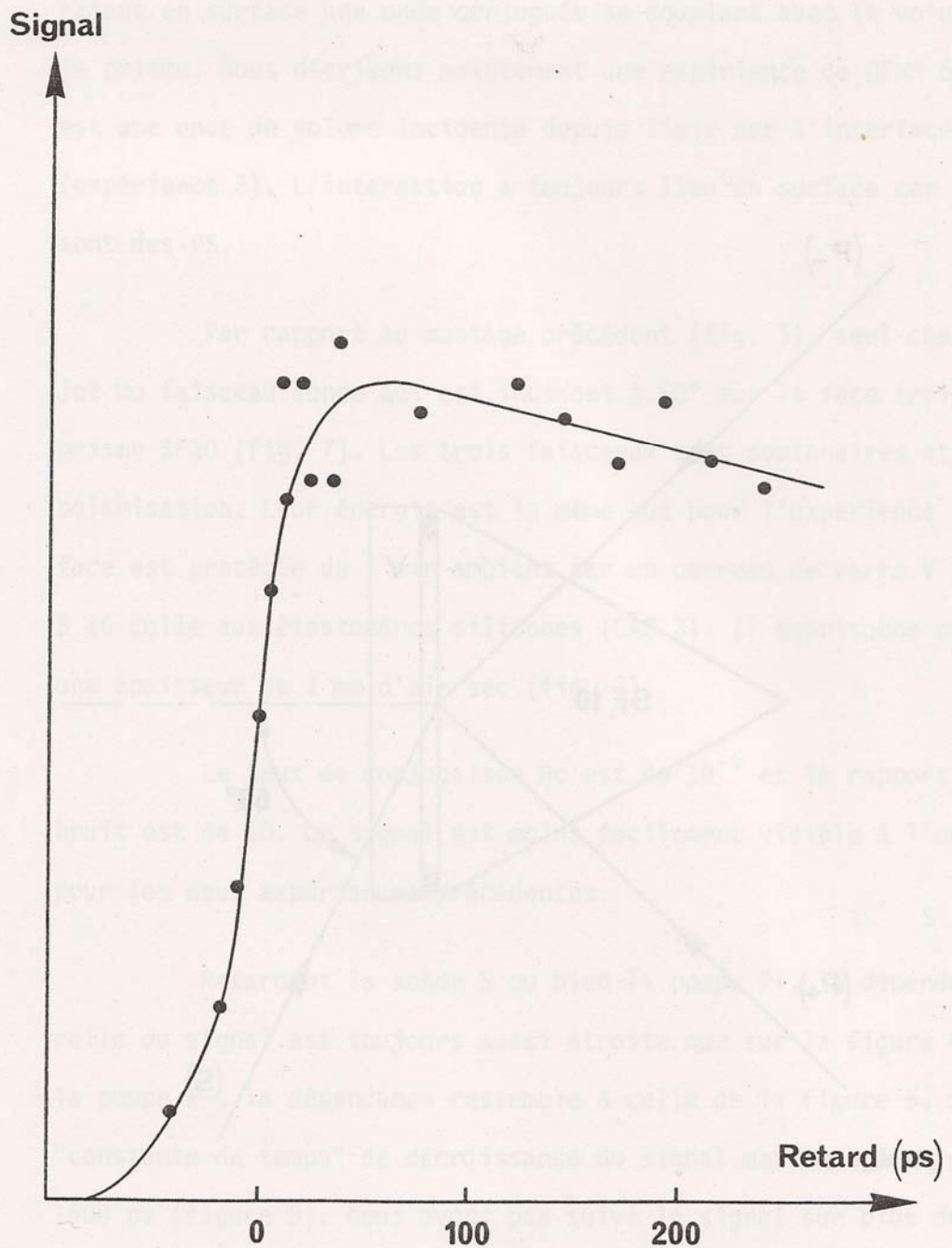


Figure 8 : Evolution du signal avec le retard de P- pour la conjugaison d'une onde de volume.

3.- INTERPRETATION

a) Diffusion thermique

Nous interprétons nos expériences de conjugaison de phase en termes d'holographie, par la création de réseaux d'indices sinusoïdaux d'origine thermique suivie de la diffraction sur ces réseaux (fig. 2). Il apparaît au vu des expériences en fonction des retards P_+ , P_- et S réalisées dans les 3 configurations décrites, que le réseau de pas étroit Λ_- , formé par l'interférence de P_- et de S , ne contribue pas au signal conjugué.

Pour le réseau de pas large (par exemple), la modulation d'indice $\delta\epsilon$ créée est :

$$\delta\epsilon(t=0) \propto \int dt (E_{p+} + E_s)^2 \quad (\text{III-6})$$

Ce qui donne, soustrayant la contribution constante à $\delta\epsilon$ et moyennant dans le temps :

$$\delta\epsilon(t=0) \propto \sqrt{I_{p+}} \sqrt{I_s} \cos q_+ \bar{s} \quad (\text{III-7})$$

où $q_+ = 2k \sin \varphi/2 = 2\pi/\Lambda_+$

I est l'intensité du faisceau (P_+ ou S) et \bar{s} est l'abscisse mesurée le long du réseau.

Partant de l'équation de la chaleur à une dimension, on trouve, pour l'évolution de $\delta\epsilon$ dans l'argent à $t > 0$, l'équation suivante :

$$\frac{\partial \delta\epsilon}{\partial t} - D \frac{\partial^2 \delta\epsilon}{\partial \bar{s}^2} = 0 \quad (\text{III-8})$$

où $D = 1,75 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ est le coefficient de diffusion thermique de l'argent.

La solution vérifiant les conditions en $t = 0$ est :

$$\delta E(t, \bar{s}) \propto \sin q_+ \bar{s} \cdot c^{-q_+^2} DT \quad (\text{III-9})$$

Les pas Λ et les constantes de diffusion thermique $\tau = (Dq^2)^{-1}$ calculés pour les différents réseaux holographiques de nos trois expériences, sont reportés sur le tableau 1.

Il apparaît, au vu de ce tableau, que le réseau de pas Λ ne contribue pas (ou très peu) au signal conjugué car sa durée de vie est courte et il est moyenné par diffusion au cours de sa création durant ~ 30 ps. Ce qui explique la symétrie de la courbe de la figure 4 et en partie, sa faible largeur. Cette largeur de 17 ps peut être considérée comme une mesure du temps de cohérence τ_c des impulsions laser ; le mélange à quatre ondes dégénéré est d'ailleurs couramment utilisé pour mesurer des temps de cohérence ⁽¹⁵⁾. En effet, seules les parties cohérentes des impulsions P+ et S interfèrent pour créer le réseau $\Lambda+$ et l'évolution du signal de la figure 4 est pratiquement la fonction de corrélation de ces parties cohérentes. Cette expérience révèle donc que la durée τ_p de nos impulsions n'est pas parfaitement limitée par transformée de Fourier car elle est supérieure à τ_c .

La décroissance exponentielle aux interfaces Ag-air des expériences 1 et 3 est due à la dépendance quadratique du signal dans l'amplitude $\delta E(t)$ de $\delta E(t, \bar{s})$; Ce qui fait une constante de temps de 470 ps pour l'expérience 1 (fig. 5) et de 1500 ps pour la 3 (fig. 8), valeurs proches des constantes expérimentales (300 et 1500 ps respectivement). Il faut noter que nous n'observons pas d'ondes acoustiques ce qui est dû à leur grande période, de l'ordre de 10^{-9} s. Cependant,

	$\Lambda + (\mu\text{m})$	$\Lambda - (\mu\text{m})$	$\tau + (\text{ps})$	$\tau - (\text{ps})$
Expérience 1	2,6	0,3	940	10
Expérience 2	1,8	0,2	470	5
Expérience 3	4,5	0,3	3000	11

Tableau 1 : Caractéristiques des réseaux holographiques des expériences 1, 2 et 3.

la décroissance plus rapide du signal de la figure 5 au-delà de 400 ps peut leur être imputée. Nous discutons la génération et l'effet de ces ondes au chapitre suivant.

L'évolution du signal de la figure 6 (expérience 2) est due, à un effet d'interférence analogue à celui qui est décrit au chapitre II. Aux temps courts ($t < 100$ ps), le réseau thermique est localisé dans le film d'argent, mais il est graduellement transféré au liquide. Du fait que les réponses non linéaires du métal et du liquide sont de signes opposés, elles ont tendance à se compenser mais pas totalement car $\delta\epsilon_m$ (m pour le métal) est complexe. Combinant les formules :

(I - 31) et (I - 33), on trouve :

$$|\vec{E}_c|^2 \propto \left| \frac{\delta\epsilon_d}{\epsilon_d^2} + \frac{\delta\epsilon_m}{\epsilon_m^2} \right|^2 \quad (\text{III-10})$$

Comme pour (II-4), on voit une fois de plus que le signal est plus sensible aux effets du diélectrique qu'à ceux du métal car dans cette configuration : $\epsilon_m^2 \approx 50 \epsilon_d^2$, $\left(\frac{d\epsilon}{dT}\right)_d \approx -10^{-3} \text{ K}^{-1}$

(Cf II-12) et $\left(\frac{d\epsilon}{dt}\right)_m \approx (1+i) 7.10^{-4} \text{ K}^{-1}$ (Cf. annexe A). Il

faut noter qu'à l'équilibre thermique, δT a la même valeur dans le métal et dans le diélectrique ; ce qui fait qu'aux temps longs (> 400 ps) :

$$|\delta\epsilon_d| \approx |\delta\epsilon_m|.$$

b) Rendement de conjugaison

On peut estimer le rendement R_c de la première expérience à partir de la formule (1-33) où on prend, conformément au chapitre I et à notre cas particulier :

$$\vec{P}_m^{NL} = \delta\epsilon_m E_{mx}^{P-} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -\frac{kx}{kmz} \end{pmatrix} e^{-i\omega t - ikx^* - 3ikmz} + CC \quad (\text{III-11})$$

où $\vec{k} = (k_x, 0, -k_m z)$ est le vecteur d'onde de la sonde dans le métal et E_{mx}^{P-} est la composante selon x du champ de la "pompe de lecture" (Cf. fig. 2a).

Pour cette expérience, $\overline{\delta \varepsilon_m} \approx 0.02$ (Cf. II-10 et III-7) et, dans le cas idéal où l'onde conjuguée est un PS résonant, le dénominateur de (I-33) vaut :

$$|\Delta(\omega, k_x^*)| = \left| (\varepsilon_m k_{pz} - \varepsilon_p k_{mz}) k_x' k_x'' \frac{\varepsilon_m'}{\alpha_d} \right| \quad (\text{III-12})$$

ce qui fait un rendement $R_c \approx 4$.

Il faut d'abord noter qu'avec un tel rendement, le calcul conduisant à (I-33) n'est plus valable car la sonde subirait alors, au cours de sa propagation des variations d'amplitude influant sur \vec{P}_m^{NL} (11). La normalisation du signal sur le cube de l'intensité des faisceaux devient d'ailleurs inutilisable quand $R_c > 1$.

On est toutefois loin d'observer un tel rendement et ce, pour plusieurs raisons :

Nos faisceaux ne sont pas parfaitement cohérents, ce qui réduit $\overline{\delta \varepsilon_m}$.

L'accord de phase n'est pas parfait, à cause de la difficulté à aligner les pompes.

Les plasmons ne sont pas excités à la résonance à cause de l'incertitude sur le réglage des angles et de la divergence des faisceaux.

La première de ces trois causes a été en partie discutée au paragraphe précédent ; elle réduit $\overline{\delta \varepsilon_m}$ d'un facteur ~ 2 . L'expérience dans laquelle ont variait l'angle d'incidence de la sonde de $\pm 20'$ autour de la résonance du PS sonde tend à confirmer les deux autres. En effet, le signal ne variait pas notablement lors de cette expérience bien que

la largeur à mi-hauteur de la courbe de réflectivité d'un tel PS soit d'environ 30° ; ce qui nous montre que le PS conjugué n'est pas excité à la résonance.

On peut d'ailleurs avoir une meilleure estimation du rendement de conjugaison en considérant simplement que le dénominateur $\Delta(\omega, k_x^*)$ de (I-33) n'est pas résonant :

$$\Delta(\omega, k_x^*) \approx (\epsilon_m k_p - \epsilon_p k_m) \epsilon_m k_d \quad (\text{III-13})$$

ce qui donne : $R_c \approx 10^{-4}$. C'est une valeur très proche des $8 \cdot 10^{-5}$ mesurés ; elle confirme donc nos hypothèses.

Le rendement de conjugaison d'une onde de volume (expérience 3) est plus faible car son couplage en onde évanescente est moins efficace que celui d'un PS et l'énergie absorbée par le métal, contribuant à $\overline{\delta \epsilon_m}$, est un faible pourcentage de l'énergie incidente de la sonde (Cf. annexe B).

Pour conclure ce chapitre, on notera que l'effet thermique a permis d'interpréter tous nos résultats. Il apparaît donc difficile, avec ce procédé d'observer des effets non linéaires ayant d'autres origines. Néanmoins, il peut s'avérer très utile expérimentalement car dans des conditions optimales, le rendement de conjugaison peut être supérieur à l'unité, comme c'est le cas en volume ⁽¹⁶⁾. On notera aussi que l'usage d'impulsions de ~ 30 picosecondes a été déterminant pour l'interprétation de ces expériences.

Une question intéressante se posant maintenant est de savoir ce que l'usage de PS à longue portée (LRSP) au lieu de PS ordinaires apporterait de plus à ces expériences ⁽¹⁷⁾. Pour ces LRSP, le facteur d'exaltation et la profondeur de pénétration du champ dans le diélectrique sont supérieurs ⁽¹⁸⁾, conduisant par exemple à une génération de second harmonique $\sim 10^4$ fois plus efficace qu'avec des PS ordinaires ⁽¹⁹⁾ et

par conséquent, à un indice non linéaire ~ 100 fois plus grand. Partant d'intensités incidentes identiques, la réponse non linéaire du liquide serait dans ce cas comparable à l'effet thermique de Ag (Cf. II-3-b). D'autre part, la distance de propagation des LRSP est de l'ordre de $300 \mu\text{m}$ ⁽²⁰⁾, bien supérieure à celle des PS ordinaires mais toujours petite devant le diamètre du faisceau pompe. L'intensité incidente est donc convertie en chaleur dans la même surface. De plus, le film d'argent doit, pour des LRSP, avoir une épaisseur d'environ 100 \AA , sa résistance à la chaleur est donc plus faible et on devrait ainsi réduire l'intensité de pompe. Nous pouvons donc affirmer que, excepté pour des diélectriques fortement non linéaires, l'usage de LRSP ne rendrait pas l'effet thermique négligeable et conduirait qualitativement aux mêmes résultats qu'avec nos PS ordinaires.

REFERENCES DU CHAPITRE III

- 1) A. YARIV :
IEEE J.QE. 14, 650 (78)
- 2) B.Y. ZELDOVICH, V.I. POPOVICHEV, V.V. RAGULSKII, F.S. FAIZULLOV :
JETP lett, 15, 109 (72)
- 3) R.W. HELLWARTH :
J.Opt.Soc.Am., 67, 1 (77)
- 4) R.A. FISHER (ed) :
"Optical Phase Conjugaison", Academic Press (83).
- 5) C.R. GIULIANO, R.C. LIND, T.R. O'MEARA et G.C. VALLEY :
J. Physique, C2, 45 (83).
- 6) J. P. HUIGNARD :
J. Physique, C2, 3, (83)
- 7) C.R. GIULIANO :
Phys. Today, 34, 27 Avril (81)
- 8) S. SAIKAN :
J. Physique, C2, 93 (83)
- 9) D.W. POHL :
IBM J.Res.Dev., 23, 604 (79)
- 10) R.C. DESAI, M.D. LEVENSON et J.A. BARKER :
Phys. Rev. A, 27, 1962 (83)
- 11) K. UJIHARA :
Opt. com., 42, 1 (82) et 43, 225 (82);
J. Opt. Soc. Am., 73, 610 (83)
- 12) J.J. COWAN :
Opt. Com., 5, 69 (72)
- 13) J.J. COWAN :
Opt. Com., 12, 373 (74)
- 14) J.J. COWAN :
dans "Optics in 4 - Dimension" édité par
M.A. MACHADO et L.M. MARDUCCI, A.I.P. (81), page 515.
- 15) H.J. EICHLER, U. KLEIN et D. LANGHANS :
Appl. Phys. 21, 215 (80)
- 16) R.G. CARO et M.C. GOWER :
Appl. Phys. lett., 39, 855 (81)

- 17) G.I. STEGEMAN et C. KARAGULEFF :
J. Appl. phys., 54, 4853 (83).
- 18) D. SARID, R.T. DECK, A.E. CRAIG, R.K. HICKERNELL, R.S. JAMESON et
J.J. FASANO :
Appl. Opt., 21, 3993 (82)
- 19 J.C. QUAIL, J.G. RAKO, H.J. SIMON et R.T. DECK :
50, 1987 (83)
- 20) A.E. CRAIG, G.A. OLSON, D. SARID :
Opt. lett., 8, 380 (83)

CHAPITRE IV

COUPLAGE NON LINÉAIRE DE PLASMONS DE SURFACE

1 - INTRODUCTION

2 - EXPÉRIENCES

3 - DISCUSSION

1.- INTRODUCTION

Deux polaritons de surface se propageant en sens inverse interfèrent pour créer un réseau de pas Λ . Ce réseau peut être mis à profit pour coupler une onde de volume à la fréquence ω , incidente depuis le diélectrique sous un angle Θ , au polariton de surface correspondant. Nous avons observé ce phénomène à une interface Ag-air.

Le problème du couplage d'un PS par un réseau "classique" est à présent bien connu (Cf.1-2-b) ; il est optimal quand :

$$\frac{\omega}{c} \sin \Theta \pm 2\pi/\Lambda = \text{Re}(k_x^{\text{PS}}) \quad (\text{IV-1})$$

ce qui est pour nous une condition d'adaptation de phase.

Le principe de la diffusion par un réseau induit est bien connu en ce qui concerne les ondes de volume. Nous pouvons l'appréhender dans le cadre de l'optique non linéaire en revenant au "formalisme" exposé au chapitre III (paragraphe 1). Si ω_p est la fréquence des deux pompes (P+ et P-) et ω est la fréquence de la sonde (i), alors, la polarisation non linéaire du troisième ordre contient un terme oscillant à la même fréquence ω que la sonde :

$$P^{\text{NL}} = \chi^{(3)}(\omega_p, -\omega_p, \omega) A_{p+} A_{p-}^* A_i e^{ik_x^{\text{PS}} x - i\omega t} + \text{cc} \quad (\text{IV-2})$$

Le vecteur d'onde \vec{k}^{PS} de cette polarisation source est celui de (III-3), et on voit qu'il ne peut généralement pas y avoir accord de phase pour des ondes de volume car $|\vec{k}^{\text{PS}}| \neq |\vec{k}^i|$. Dans le cas d'une interaction de surface, il peut par contre y avoir accord de phase quand \vec{k}^{PS} est le vecteur d'onde du PS de fréquence ω et ce, bien que $|\vec{k}^{\text{PS}}| \neq |\vec{k}^i|$.

La méthode que nous proposons ici est un cas de mélange à quatre ondes nondégénéré de surface qui a déjà été discuté théoriquement pour des milieux à fortes non linéarités optiques ⁽¹⁾. La principale différence vient ici de ce que nous attendons des effets d'origine thermique (il s'agit de Diffusion Rayleigh forcée).

Généralement, pour les interactions de volume, la diffusion Rayleigh forcée s'accompagne de diffusion Brillouin stimulée, c'est-à-dire que le réseau thermique apporte l'adaptation de phase nécessaire à l'excitation d'ondes acoustiques. Ce processus conduit à un changement de la fréquence des pompes d'une quantité égale à la fréquence de ces ondes acoustiques (à leur durée de vie près). On peut tout de suite remarquer que nous savons ne pas pouvoir, avec notre laser, observer de tels décalages de fréquence (~ 4 GHz) car ils sont noyés par la largeur de raie de nos impulsions (~ 30 GHz).

L'interaction étudiée ici ayant lieu en surface, les ondes acoustiques excitées seront donc des ondes guidées par la surface, dites ondes de Rayleigh.

Notons enfin que cette expérience n'est pas sans rappeler, sur le plan du concept (couplage non linéaire d'ondes de surfaces), les méthodes d'excitation et de détection mises au point par De Martini et Al. (2-3).

2.- EXPERIENCES

a) Dispositif expérimental

L'essentiel du dispositif est identique à celui du montage de conjugaison d'une onde de volume (Fig. III-3 et III-7). La différence vient de ce que la pompe est maintenant à $1,06 \mu\text{m}$ et que l'onde de surface à $0,53 \mu\text{m}$ est détectée grâce à son couplage en volume par l'intermédiaire du prisme en SF 10 (Fig. 1). Les faisceaux sont tous dans le même plan et leur polarisation est toujours horizontale. La surface d'argent est encore protégée de l'air ambiant par un carreau de verre en B16. La sonde est incidente sur la surface avec un angle $\Theta = 2,3^\circ$. Le signal émerge du prisme à 1° du faisceau pompe P-. Afin d'éviter toute erreur angulaire dans la position des faisceaux, on s'est basé pour son réglage sur la rotation du prisme par rapport à la normale aux faces. On les a alignés de telle sorte que :

$$\text{Re} \left(k_{x(p+)}^{ps} + k_{x(p-)}^{ps} + k_{x(i)} - k_{x(o)}^{ps} \right) = 0 \quad (\text{IV-3})$$

i et o désignent la sonde et le signal ; le réseau des pompes (P+ et P-) a un pas $\Lambda = 0,526 \mu\text{m}$. Cette condition est celle d'accord de phase à deux dimensions (Cf. I-3-a).

Dans cette expérience, le minimum de réflectivité de la pompe à $1,06 \mu\text{m}$ est inférieur à 3% et sa largeur à mi-hauteur est de $7'$ d'angle interne ($\eta_p = 1,704$). Pour cette même surface, le minimum de réflectivité d'un plasmon à $0,53 \mu\text{m}$ n'est que de 30% et sa largeur à mi-hauteur est d'environ $30'$ ($\eta_p = 1,735$)*.

On travaille avec une intensité de $0,2 \text{ mJ}$ par faisceau pompe de 5 mm de diamètre et de $0,5 \text{ mJ}$ pour la sonde de 2 mm de diamètre.

* Cf. formule (II-2).

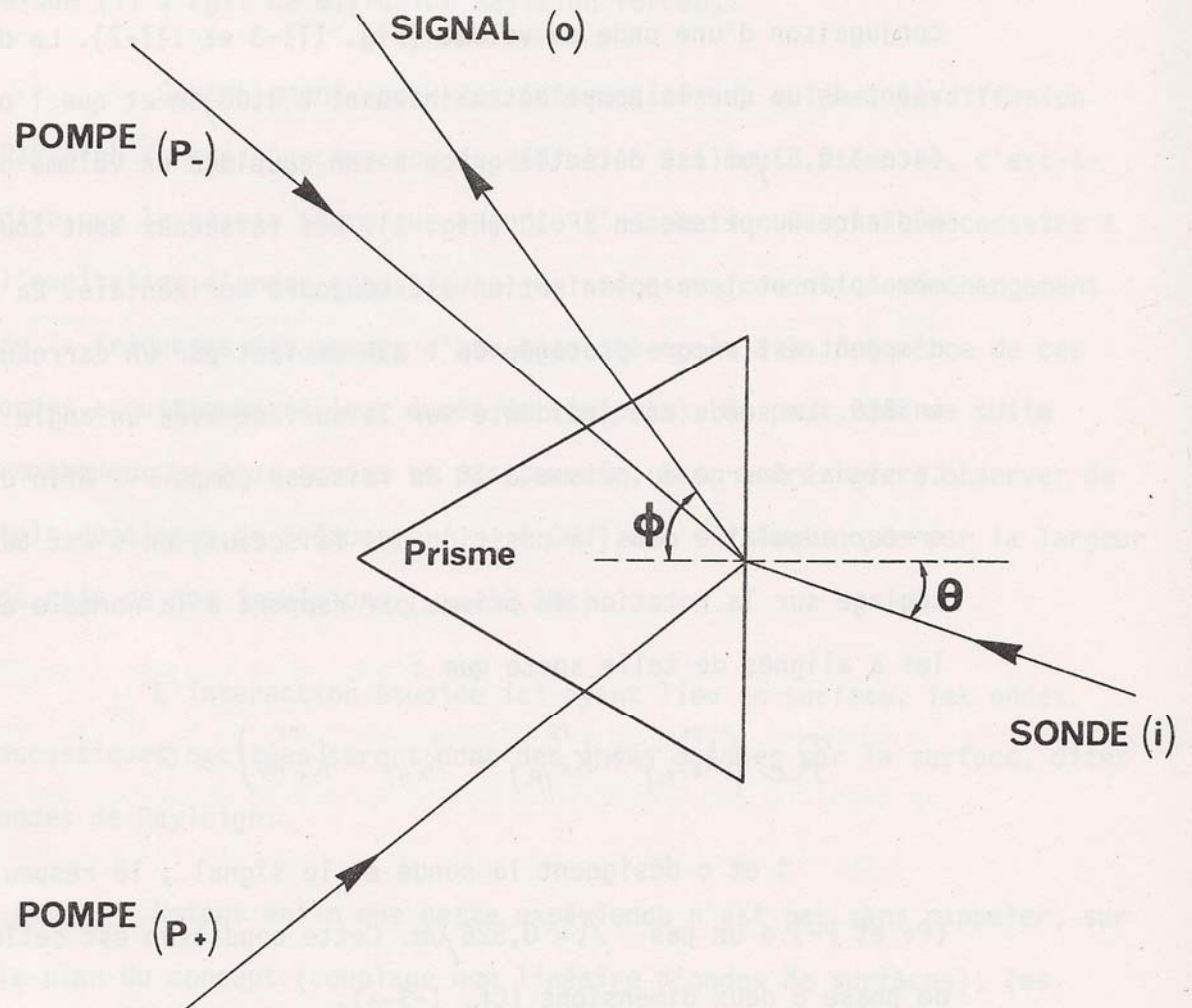


Figure 1 : Configuration de l'expérience.

Afin d'éliminer certaines sources de bruit, on coupe toute la lumière verte accompagnant la pompe avec un verre coloré parallèle Schott RG2 et comme au chapitre précédent, on collecte le signal à l'aide d'une lentille focalisant sur une ouverture de 0,5 mm de diamètre. On détecte toujours le signal avec un tube photomultiplicateur 56 TVP. Pour chaque point, on accumule sur 20 tirs laser ayant un niveau de référence suffisant.

Avec ce dispositif, le signal est nettement visible à l'oeil nu. Le rapport signal sur bruit est supérieur à 100 bien que le taux de couplage optimal soit faible :

$$\left| \frac{\vec{E}_o}{\vec{E}_i} \right|^2 \sim 10^{-5}$$

On a contrôlé sa linéarité avec l'intensité de chacun des faisceaux, ce qui est caractéristique du mélange à quatre ondes. Nous avons donc étudié le signal convenablement normalisé.

b) Dépendance temporelle

Etudiant le signal en fonction du retard d'une des pompes, P+ ou P- (fig. 2), il apparaît qu'elles jouent un rôle symétrique, ce qui est cohérent avec le fait qu'elles interfèrent pour créer le réseau de couplage de la sonde.

La largeur à mi-hauteur de la courbe est de ~ 40 ps, le temps de cohérence de la pompe à $1,06 \mu\text{m}$ n'est pourtant pas supérieur à ce qu'il était pour la pompe à $0,53 \mu\text{m}$ dans le chapitre précédent (largeur ~ 17 ps). Cette courbe semble avoir un pied auquel est due sa largeur excessive. En effet, les deux faisceaux pompes font entre eux un angle de 72° dans le prisme, les parties opposées des impulsions pompes arrivent donc sur l'interface en des instants différents, ce qui conduit à un

Signal (u.a.)

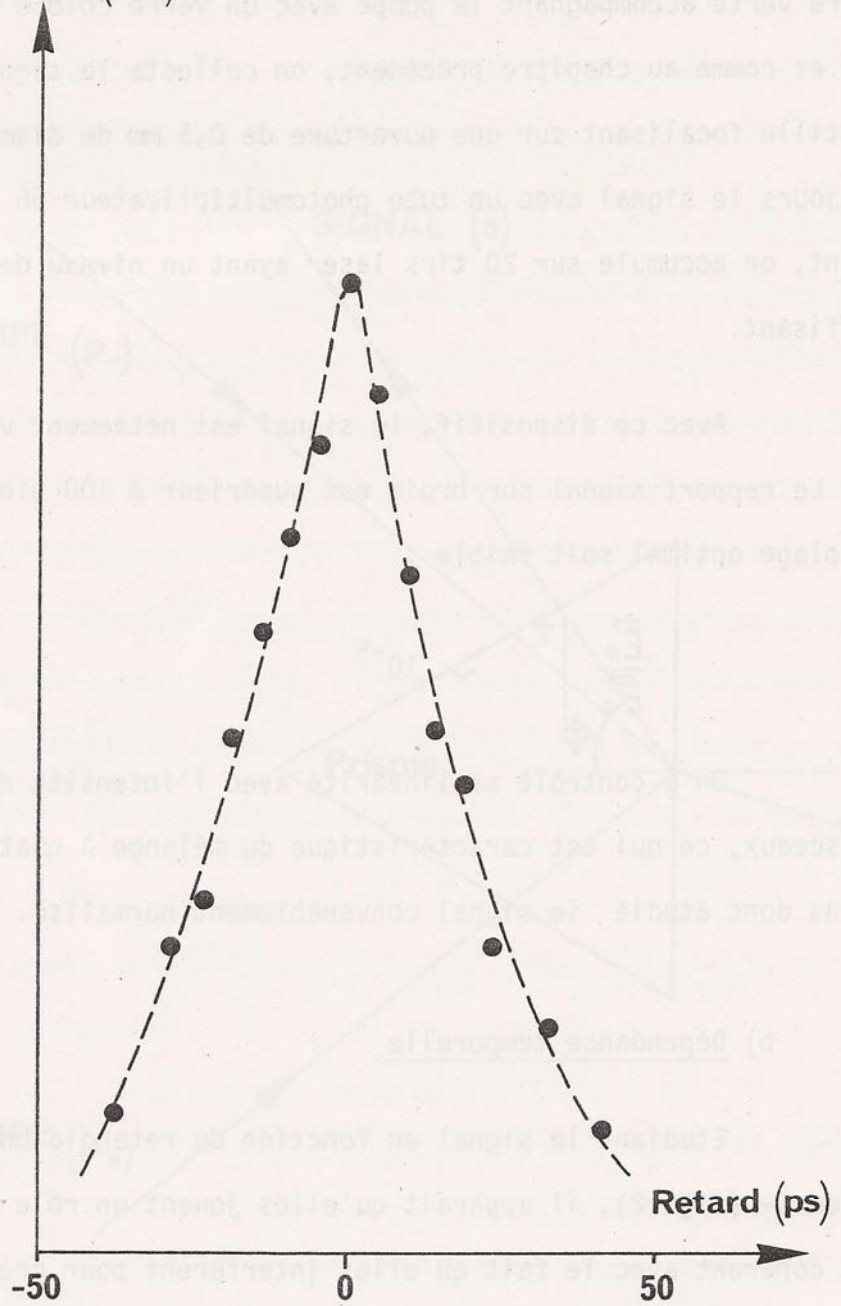


Figure 2 : Dépendance du signal avec le retard d'une des pompes.

élargissement apparent de ~ 20 ps. Lors de l'expérience du chapitre précédent, l'angle entre les faisceaux créant le réseau n'était que de $\sim 12^\circ$ et conduisait ainsi à un élargissement négligeable de ~ 4 ps.

Etudiant le signal en fonction du retard de la sonde, nous obtenons la figure 3. Elle est constituée d'un pic principal aux temps courts de ~ 200 ps de largeur, suivi d'oscillations presque périodiques de période $T \sim 300$ ps et d'amplitude ~ 4 fois moindre. L'attribution du pic principal est immédiate dans les termes du chapitre précédent car le signal dû à un réseau thermique statique disparaît avec une constante de temps :

$$\tau = \frac{\Lambda^2}{8 \pi^2 D} \approx 20 \text{ ps} \quad (\text{IV-4})$$

ce qui est cohérent avec l'expérience (~ 50 ps). L'apparente augmentation du temps de décroissance est un artéfact causé par la largeur (~ 30 ps) de l'impulsion sonde. La période (~ 300 ps) des oscillations est identique à celle d'une onde sonore se propageant à la vitesse v :

$$v = \frac{\Lambda}{T} \approx 1850 \text{ m/s} \quad , \quad (\text{IV-5})$$

proche de celle des ondes transverses dans l'argent : $v_t = 1610 \text{ m/s}^{(16)}$.

c) Dépendance angulaire

Nous n'avons pas étudié la baisse de réflectivité de la sonde car elle était insignifiante. Nous avons par contre étudié l'efficacité du couplage en fonction de l'angle d'incidence .

Durant cette expérience, le prisme doit rester fixe afin de ne pas perturber le réglage des pompes.

L'angle θ est donc ajusté à l'aide de deux miroirs montés sur trait-point-plan et placés sur le trajet du faisceau sonde. Pour

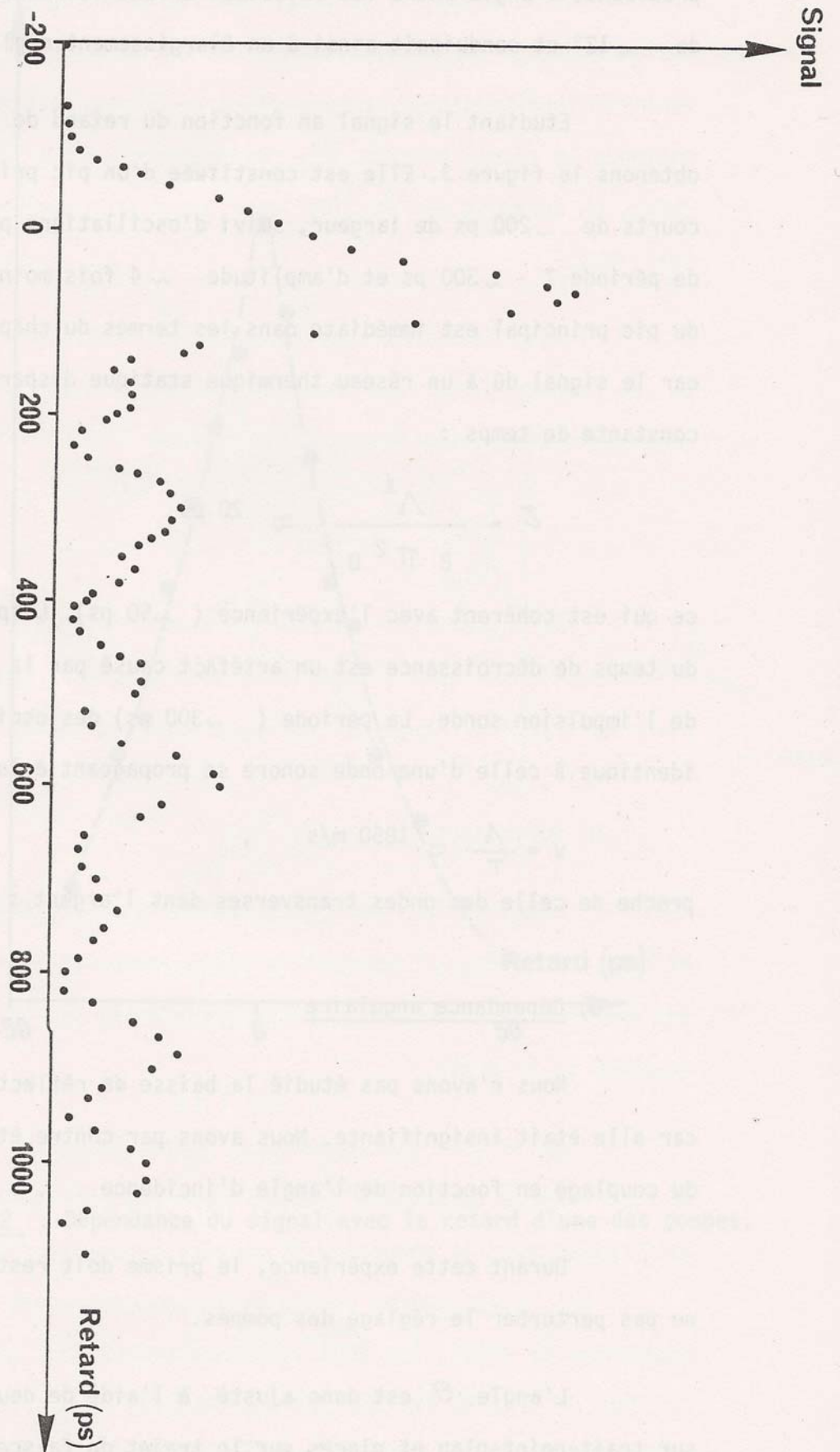
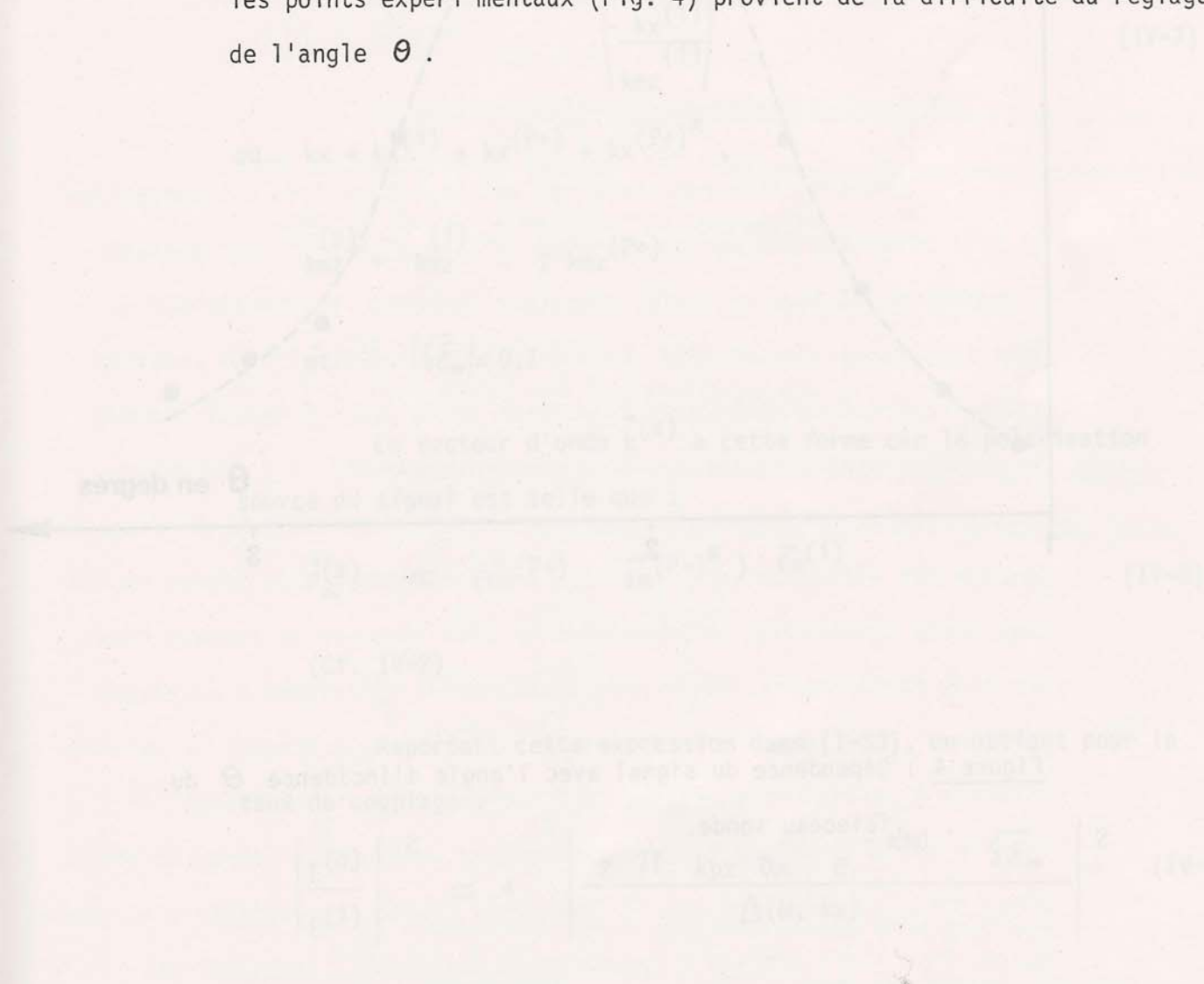


Figure 3 : Dépendance du signal avec le retard de la sonde.

chaque point expérimental, on s'assure du bon recouvrement spatial des faisceaux sur la surface et on optimise le signal en fonction du retard sonde. Durant toute l'expérience, le signal est resté visible à l'oeil nu, ce qui simplifiait sa recherche car son angle d'émergence φ dans le prisme (fig. 1) dépend de θ comme :

$$n_p \frac{\omega}{c} \sin \varphi = \frac{\omega}{c} \sin \theta + \frac{2\pi}{\Lambda} , \quad (\text{IV-6})$$

Le signal décrit une courbe en forme de cloche centrée sur $\theta \sim 2^\circ$ et de largeur à mi-hauteur $\delta \theta \sim 1^\circ$ qui est celle ($\delta \theta^{\text{PS}}$) de la courbe de réflectivité du plasmon excité à $0,53 \mu\text{m}$ avec le même système (Cf. § 2-a). On constate en effet que $n_p \delta \theta^{\text{PS}} \approx \delta \theta$. La dispersion sur les points expérimentaux (Fig. 4) provient de la difficulté du réglage de l'angle θ .



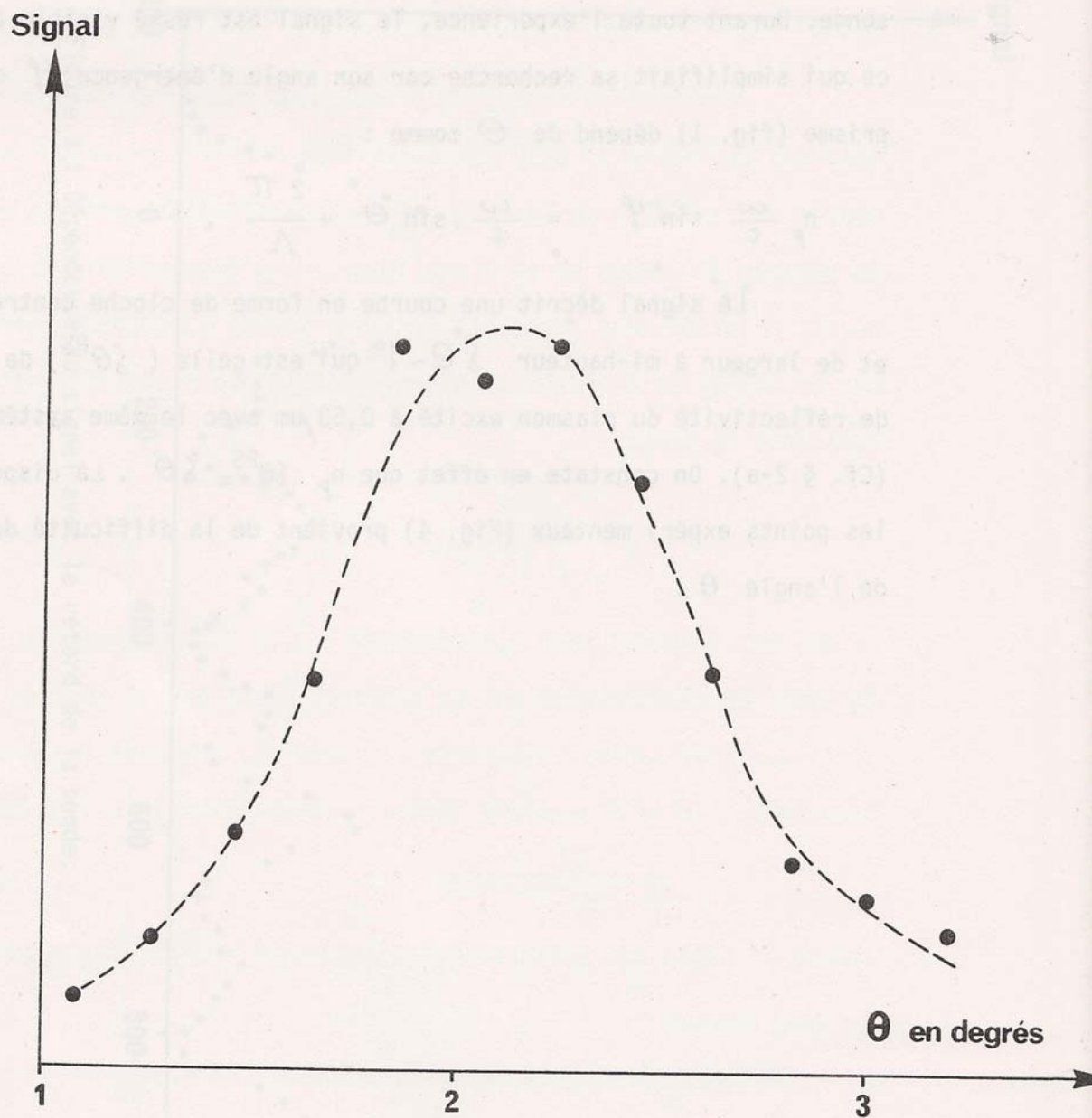


Figure 4 : Dépendance du signal avec l'angle d'incidence θ du faisceau sonde.

3.- DISCUSSION

a) Efficacité du couplage

Il est possible de remonter à l'efficacité optimale du couplage à partir de la formule (I-33), comme nous l'avons fait pour la conjugaison de phase (chapitre III-3-b). Pour cette configuration de mélange à quatre ondes, la polarisation source s'écrit (Cf. III-11) :

$$\vec{A}_{pm}^{(s)} = \overline{\delta \mathcal{E}_m}^{(i)} E_{mx} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -\frac{k_x^{(i)}}{k_{mz}} \end{pmatrix} e^{ik_x x + ik_{mz} z - i\omega t + cc} \quad (IV-7)$$

$$\text{où } k_x = k_x^{(i)} + k_x^{(P+)} + k_x^{(P+)*},$$

$$k_{mz}^{(s)} = k_{mz}^{(i)} - 2 k_{mz}^{(P+)}$$

$$\text{et } |\overline{\delta \mathcal{E}_m}| \approx 0,1$$

Le vecteur d'onde $\vec{k}^{(s)}$ a cette forme car la polarisation source du signal est telle que :

$$\vec{p}_m^{(s)} \propto (\vec{E}_m^{(P+)} \cdot \vec{E}_m^{(P-)*}) \cdot \vec{E}_m^{(i)} \quad (IV-8)$$

(Cf. IV-2)

Reportant cette expression dans (I-33), on obtient pour le taux de couplage :

$$\left| \frac{E^{(o)}}{E^{(i)}} \right|^2 \approx a \left| \frac{2 \pi k_{pz} \alpha_m e^{-\alpha_{md}} \overline{\delta \mathcal{E}_m}}{\Delta(\omega, k_x)} \right|^2 \quad (IV-9)$$

où a est un facteur angulaire valant :

$$a = \left| \frac{E_x(i)}{E_x(o)} \frac{\vec{E}(o)}{\vec{E}(i)} \right|^2 \approx 2.10^{-2} \quad (\text{IV-10})$$

et $\Delta(\omega, kx)$ est donné par la formule (III-12).

Tout ceci conduit à un taux de couplage de 3.10^{-5} , très proche de la réalité ($\sim 10^{-5}$).

La forme en cloche de la courbe de la figure 4 est le reflet de la variation de $|\Delta(\omega, kx)|^{-2}$ avec l'angle θ . Le fait que la réflectivité (formule I-21) et le couplage aient le même dénominateur justifie l'égalité de leurs largeurs à mi-hauteur.

b) Ondes acoustiques de surface

Cette section est consacrée aux problèmes liés à l'excitation et à la détection d'ondes acoustiques. Miller et Al. ⁽⁴⁾ ont discuté l'excitation optique de telles ondes par le réseau d'interférence de deux impulsions picosecondes. Deux processus conduisent à sa création : l'électrostriction et l'absorption. Dans notre cas, un calcul d'ordre de grandeur montre que le deuxième est prépondérant. Il y a création impulsionnelle (en ~ 30 ps) d'un réseau thermique statique qui disparaît ensuite par diffusion, en ~ 40 ps. Pendant ce temps, ce réseau excite deux ondes acoustiques se propageant en sens inverses et formant ainsi une onde stationnaire. Cette onde stationnaire correspond à un réseau dynamique. Dans le cas d'un fluide illimité, on peut trouver la solution aisément à partir des équations de l'hydrodynamique linéarisées ⁽⁵⁾. Dans le cas d'un solide isotrope présentant une surface libre, le problème est plus compliqué car il faut tenir compte des conditions de continuité. On a alors affaire à des ondes de Rayleigh ⁽⁶⁾ qui sont une

combinaison linéaire d'ondes de compression et de cisaillement. Le couplage d'un polariton de surface par une telle onde a déjà été observé par Talaat et Al.⁽⁷⁾.

Nous présentons dans ce qui suit une solution approchée de notre problème particulier. L'évolution du réseau thermique créé impulsivement par l'absorption des pompes est la solution de l'équation de la chaleur dans l'argent et a la forme :

$$\delta T \approx T_0 (1 + \cos qx e^{-q^2 DT}) \quad (\text{IV-12})$$

Ici, δT est la modulation de température du film d'argent, $T_0 \approx 100 \text{ K}$ est l'échauffement initial et $q = 2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde du réseau.

Le gradient de cette modulation de température est la source d'une fluctuation de densité $\delta \rho$ reliée aux déplacements élémentaires du solide par l'équation de continuité :

$$\delta \rho = - \rho \operatorname{div} \vec{U} \quad (\text{IV-1"})$$

où $\rho = 10,3 \text{ g cm}^{-3}$ est la densité de Ag.

Les déplacements \vec{U} se font dans le plan d'incidence (x, z) et doivent satisfaire les conditions de continuité à la surface libre $(z = 0)$ qui sont

$$\frac{\partial U_x}{\partial z} + \frac{\partial U_z}{\partial x} = 0 \quad (\text{IV-14})$$

$$V_l^2 \frac{\partial U_z}{\partial z} + (V_l^2 - 2V_t^2) \frac{\partial U_x}{\partial x} = 0$$

où V_l est la vitesse des ondes longitudinales (3650 m/s) et V_t celle des ondes transverses (1610 m/s)⁽¹⁶⁾. U_x et U_z sont les composantes de \vec{U} .

On décompose \vec{U} en contributions transverse et longitudinale vérifiant

$$\begin{aligned}\vec{U} &= \vec{U}_l + \vec{U}_t \\ \text{rot } \vec{U}_l &= 0 \\ \text{div } \vec{U}_t &= 0\end{aligned}\quad (\text{IV-15})$$

et dont l'équation d'onde homogène est :

$$\vec{U}_a - v_a^2 \vec{\nabla}^2 \vec{U}_a = 0 \quad (a = l \text{ ou } t) \quad (\text{IV-16})$$

Considérant d'autre part que la source $\vec{\nabla}^2 \delta T$ des fluctuations de densité $\delta \rho$ est impulsionnelle, ce qui est cohérent avec l'expérience (fig. 3) et avec le fait que $(D q^2)^{-1} \approx 40$ ps, on peut prendre pour condition initiale sur U_l :

$$U_{lx}(t=0, z=0) = \frac{v \beta_T T_0}{q^2 D} \sin qx \quad (\text{IV-17})$$

où $\beta_T = 5,7 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ ⁽¹⁶⁾ est le coefficient de dilatation thermique de Ag.

Le détail de la solution est donné dans le cours de Landau et Lifchitz ⁽⁶⁾ et elle s'écrit :

$$\begin{aligned}\vec{U}_l &= \frac{v \beta_T T_0}{q^2 D} \begin{pmatrix} \sin qx \\ 0 \\ -\frac{\chi_l}{q} \cos qx \end{pmatrix} e^{\chi_l z} \sin \omega t \\ \vec{U}_t &= A \frac{v \beta_T T_0}{q^2 D} \begin{pmatrix} \frac{\chi_t}{q} \cos qx \\ 0 \\ \sin qx \end{pmatrix} e^{\chi_t z} \cos \omega t\end{aligned}\quad (\text{IV-18})$$

$$\text{où } \chi_a = \sqrt{q^2 - \frac{\omega^2}{v_a^2}} > 0 \quad (a = l \text{ ou } t)$$

ω vérifie la relation de dispersion des ondes de Rayleigh : $\omega = V q$
 et $V = 0,94 V_t$, et $A = -1,64$ (A et V/V_t dépendent du coefficient de Poisson $\sigma = 0,38$).

En toute rigueur, nous aurions dû tenir compte de l'effet du prisme car la profondeur de pénétration de ces ondes (χ^{-1}) dans l'argent est de l'ordre de 10^3 \AA , le double de son épaisseur. Ce problème est abondamment traité dans la littérature (8, 9) et sa solution pour notre cas particulier est qualitativement identique. Le principal changement est dans la vitesse de propagation V : elle est plus grande car le prisme est plus "dur" que l'argent ($V_t \text{ prisme} \approx 3000 \text{ m/s}$), ce qui est vérifié expérimentalement ($V = 1850 \text{ m/s}$).

Tous ces termes contribuent à la diffusion de la lumière (10) par l'intermédiaire (fig. 5) d'une modulation d'indice :

$$\delta \varepsilon = \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \ell} \right)_T \delta \ell + \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_\ell \delta T \quad (\text{IV-19})$$

et d'un réseau d'amplitude à la surface libre : U_z ($z = 0$).

On retrouve les mêmes effets en diffusion Brillouin de surface (11, 12). Comme nous l'avons vu plus haut, le terme en δT ne contribue qu'à la diffusion aux temps courts.

A présent, nous pouvons estimer l'influence relative sur le couplage des termes volumiques ($\delta \ell$) et surfaciques (U_z). Combinant les formules (I-33) et (I-43), on obtient le rapport des deux contributions :

$$\frac{E_{px}^{(surf)}}{E_{px}^{(vol)}} = - \frac{\varepsilon_m^2 \alpha_d \bar{U}_z}{\pi \delta \varepsilon} \quad (\text{IV-20})$$

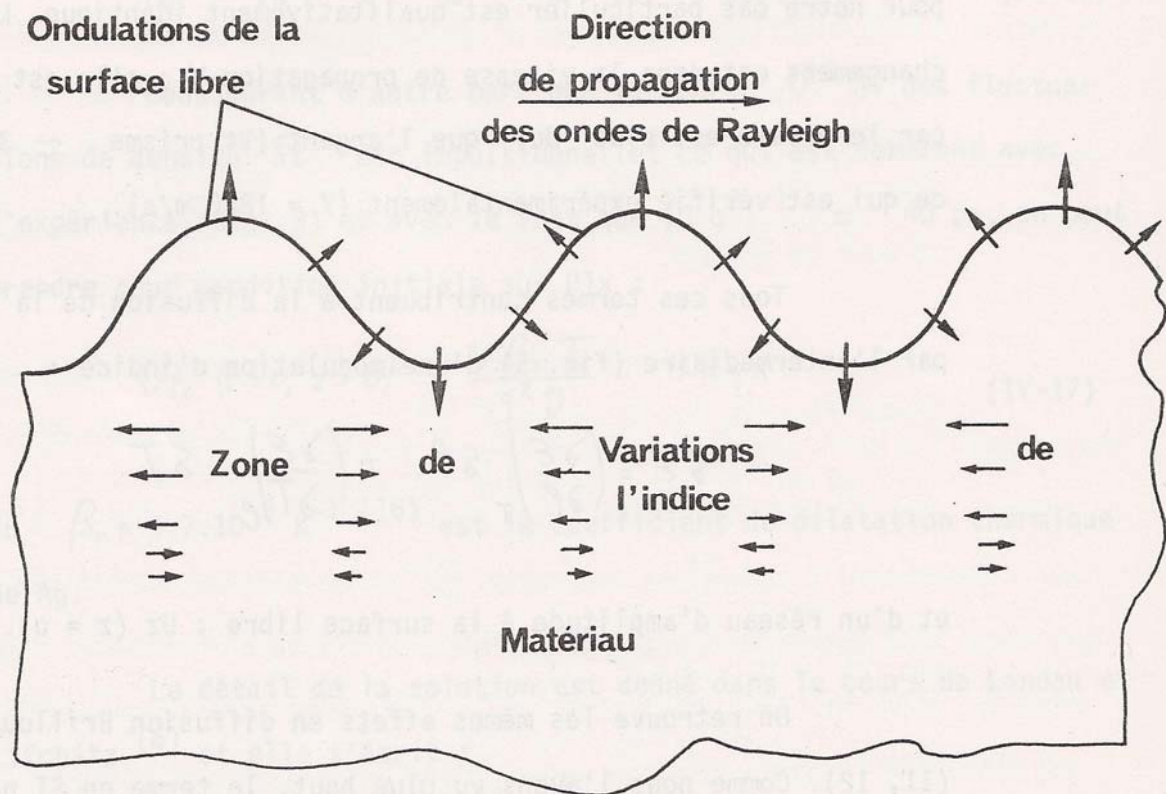


Figure 5 : Coupe du matériau au voisinage de la surface libre dans le cas d'une onde de Rayleigh. (d'après J. SAPRIEL, "L'acousto-optique", Masson (76), page 65)

où \bar{U}_z et $\bar{\delta\mathcal{E}}$ désignent les amplitudes en $z = 0$ de U_z et $\delta\mathcal{E}$.

Comme d'autre part, d'après (IV-18) et (IV-13) :

$$\left| \frac{q \bar{U}_z}{\bar{\delta\mathcal{E}}} \right| = 0,84 \quad (\text{IV-21})$$

la contribution de la surface au couplage est ~ 10 fois plus grande que celle du volume.

Revenant à la formule (IV-19) que l'on peut réécrire (Cf. annexe A) :

$$\delta\mathcal{E} \approx -12 \left(\frac{\delta\ell}{\ell} - \beta_T (1+i) \delta T \right) \quad (\text{IV-22})$$

on déduit un rapport de l'amplitude du signal aux temps courts ($\propto \delta T$) à celle aux temps longs ($\propto \bar{U}_z$) de l'ordre de 2, ce qui est un bon ordre de grandeur, cohérent avec l'expérience (fig. 3).

Nous noterons au passage que \bar{U}_z reste faible ($\bar{U}_z \sim 20 \text{ \AA}$) la condition (I-44) est donc remplie et la formule (I-43) est applicable. D'autre part, la vitesse de déformation aussi reste faible ($\dot{U} \sim 3.10^{-2} \text{ Vt}$), nous pouvons donc négliger les effets acoustiques non linéaires (13).

A ce niveau, nous n'avons toujours pas expliqué la non périodicité des oscillations de la figure 3. Nous proposons de l'attribuer au deuxième mode de Rayleigh, dit mode de Sezawa (14), présent dans les films minces et dont la vitesse de propagation est proche de celle des ondes transverses dans le prisme (8). En effet, nous avons pu, avec une bonne précision, reproduire ces oscillations en faisant interférer le premier mode de vitesse $V = 1850 \text{ m/s}$ avec un mode d'amplitude ~ 4 fois plus faible se propageant à 3500 m/s . La figure 6 illustre l'importance de ce mode dans la reproduction des oscillations d'origine acoustique de la figure 3.

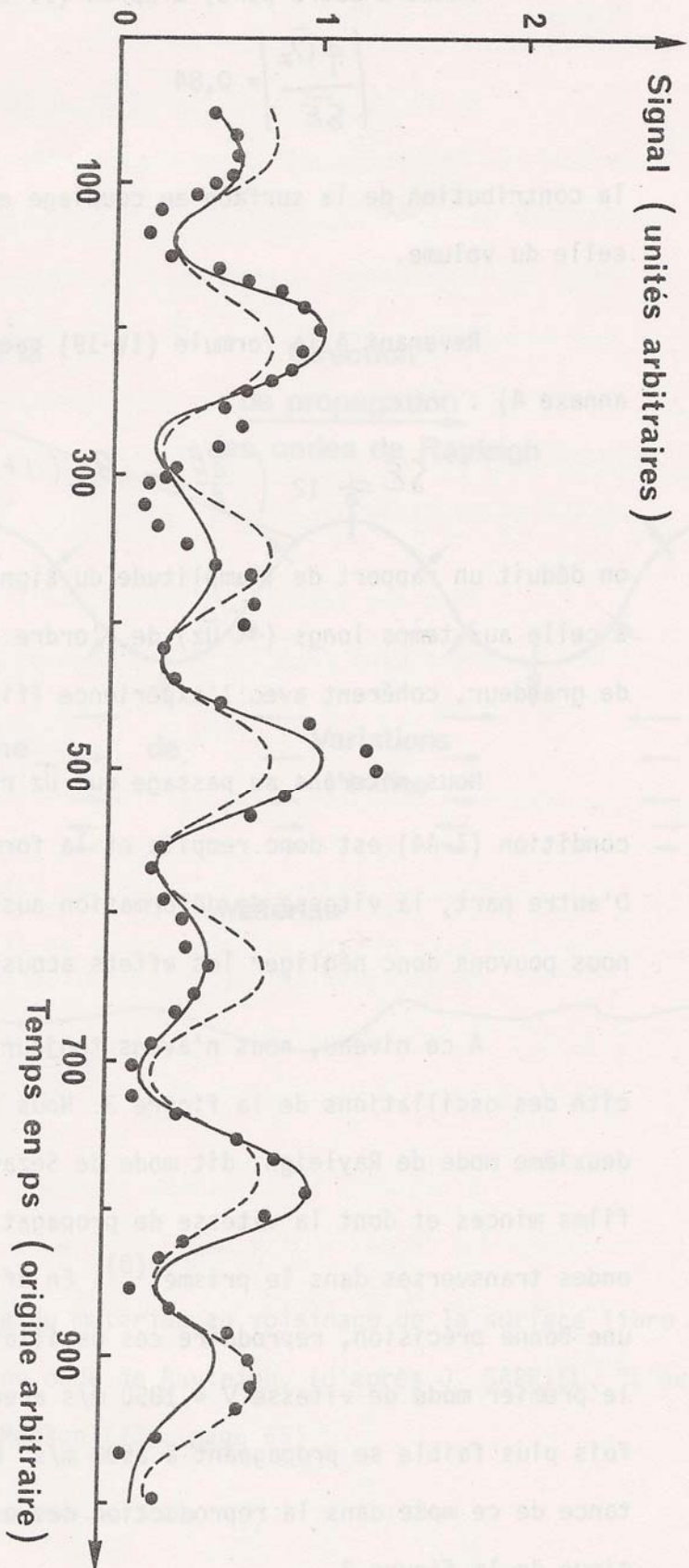


Figure 6 : Ajustement par moindres carrés des oscillations d'origine acoustique du signal, avec mise en évidence du mode de Sezawa :

points expérimentaux (●)
 ajustement du premier mode seul (---)
 ajustement incluant le mode de Sezawa (—)

On peut aussi observer de tels modes en diffusion Brillouin dans les films minces ⁽¹⁵⁾. Ces modes de Rayleigh sont l'analogie acoustique des ondes électromagnétiques guidées.

Nous concluons ce chapitre en remarquant que l'usage d'impulsions picosecondes a encore une fois été d'un intérêt primordial avec la mise en évidence du couplage par les ondes de Rayleigh. Nous n'avons pas essayé de mesurer la durée de vie de ces ondes car elle est trop grande ($\sim 10^{-8}$ s dans Ag) ⁽¹⁵⁾ pour notre dynamique de résolution temporelle.

D'un point de vue pratique, cette méthode d'excitation de polaritons de surface avec des impulsions picosecondes ouvre de nouveaux horizons dans l'étude des ondes de Rayleigh et de leurs applications ⁽¹⁷⁾.

REFERENCES DU CHAPITRE IV

- 1) S.T. HENDOW et K. UJIHARA :
Opt. Com., 45, 138 (83)
- 2) F. DE MARTINI et Y.R. SHEN :
Phys. Rev. Lett., 36, 216, (76)
- 3) F. DE MARTINI, G. GUILIANI, P. MATALONI, E. PALANGE et Y.R. SHEN :
Phys. Rev. Lett., 37, 440 (76)
- 4) R.J.D. MILLER, R. CASALEGNO, K.A. NELSON et M.D. FAYER :
Chem. Phys., 72, 371 (82)
- 5) W. KAISER et M. MAIER :
dans "Laser Handbook", volume 2, édité par
F.T. ARECCHI et E.O. SCHULZ-DUBOIS, North-Holland
(72), page 1113.
- 6) L. LANDAU et E. LIFCHITZ :
"cours de Physique Théorique", tome VII, Editions Mir,
(67), page 139.
- 7) H. TALAAT, W.P. CHEN, E. BURSTEIN et J. SCHOENWALD :
dans "Ultrasonics Symposium Proceedings", IEEE (75),
page 441.
- 8) G.W. FARNELL et E.L. ADLER :
dans "Physical Acoustics", Vol. 9, édité par W.P. MASON
et R.N. THURSTON, Academic Press (72), page 35.
- 9) E. DIEULESANT et D. ROYER :
dans "Handbook of surfaces and interfaces", vol. 2,
édité par L. DOBRZYNSKI, Garland STPM Press (78), page 65.
- 10) E.G.H. LEAN :
dans "Progress in optics", Vol. 11, édité par E. WOLF,
North Holland (73), page 125.
- 11) M. FUKUI, O. TODA; V.C.Y. SO et G.I. STEGEMAN :
Sol. Stat. Com., 36, 995 (80).
- 12) V. BORTOLANI, F. NIZZOLI, G. SANTORO, J.R. SANDERCOCK et A.M. MARVIN :
dans "Proc. VIIth Conf. on Raman Spectroscopy"
(Ottawa, 1980), North Holland (80), page 442.
- 13) E.G.H. LEAN :
dans "Struttura atomica e proprietà dei solidi",
cours 52, édité par E. BURSTEIN, Academic Press (72),
page 410.

- 14) K. SEZAWA et K. KANAI :
Bull. Earth. Res. Inst. Tokyo, 13, 237 (35)
- 15) G.I. STEGEMAN et NL . ROWELL :
dans "Proc. VIIth Conf. on Raman spectroscopy"
(Ottawa 1980) North Holland(80), page 360.
- 16) American Institute of Physics Handbook, 3ème ed., Mc Graw Hill (72),
page 360 .
- 17) A.A. OLINER (ed) :
"Acoustic Surface Waves", springer Verlag (78).

CONCLUSION

Au cours de ce travail, nous avons montré que l'échauffement du métal produit par l'atténuation de plasmons de surface conduisait à de fortes variations d'indice. Il est apparu que les réponses non linéaires optiques du diélectrique organique et des électrons du métal étaient noyées par l'effet thermique (effet Joule).

Cet effet intense nous a permis de réaliser de la conjugaison de phase en surface dans deux configurations différentes:

- Une dans laquelle les quatre ondes sont des plasmons de surface.
- L'autre dans laquelle les deux ondes pompes sont des plasmons de surface tandis que la sonde et son conjugué sont des ondes de volume.

A ce propos, nous montrons que, contrairement à ce que l'on attendrait à priori, l'usage de plasmons de surface à longue portée ne permettrait pas, pour de telles expériences, de s'affranchir de l'effet thermique.

Dans une expérience similaire nous avons utilisé le réseau d'interférences de deux plasmons de surface se propageant en sens inverse pour coupler une onde de volume au plasmon de surface correspondant. Cette expérience nous a permis d'observer les ondes de Rayleigh créées par effet Brillouin thermique stimulé.

Toute cette étude a été rendue possible grâce à l'utilisation d'impulsions picosecondes. Il en ressort que la diffusion Rayleigh forcée de surface peut permettre de mesurer des paramètres tels que les

constantes de diffusion thermique des matériaux utilisés ou les constantes de propagation des ondes acoustiques guidées de surface.

ANNEXE A

a) Temps de collision des électrons dans l'argent

Le temps de collision τ des électrons d'un métal a essentiellement trois origines : (1-3)

- les collisions entre électrons (τ_e)
- les collisions avec les phonons (τ_ϕ)
- les défauts de l'échantillon (τ_s)

Chacune de ces contributions étant indépendante des autres, on a :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_e} + \frac{1}{\tau_\phi} + \frac{1}{\tau_s}$$

τ_s est principalement dû à la surface et aux défauts de l'échantillon; Il ne dépend ni de la température T ni de la fréquence ω .

τ_e ne dépend en première approximation que de ω , il est inversement proportionnel à son carré : $\tau_e^{-1} \propto \omega^2$.

τ_ϕ ne dépend que de T à travers la formule de Holstein (4):

$$\frac{1}{\tau_\phi} = \frac{1}{\tau_0} \left\{ \frac{3}{5} + 4 \left(\frac{T}{\Theta} \right)^5 \int_0^{\Theta/T} \frac{z^4 dz}{e^z - 1} \right\}$$

où $\Theta = 220 \text{ K}$ est la température de Debye ($\Theta \propto \rho^{1/3}$) et $\tau_0 = 4.10^{-14} \text{ s}$ est un paramètre ajusté expérimentalement.

A 5320 Å° , on a $\tau \approx 10^{-14} \text{ s}$.

b) Variations thermiques de la constante diélectrique

La constante diélectrique ϵ de Ag change sous l'effet d'un échauffement δT à pression constante comme :

$$\epsilon_2 - \epsilon_1 = \int_{T_1}^{T_2} \left\{ \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_p - \beta_T p \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial p} \right)_T \right\} dT$$

où 1 et 2 désignent respectivement les états initial et final. Ce qui, pour de petites variations, peut s'écrire (5, 6) :

$$\delta \epsilon = \left\{ \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_p - \beta_T p \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial p} \right)_T \right\} \delta T$$

(δ désigne la différence entre les états 2 et 1).

Il apparaît d'autre part, d'après le modèle de Drude, que ϵ ne dépend de T et de p que par l'intermédiaire de ω_p ($\omega_p \propto p^{1/2}$) et de τ .

En effet, notant $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$, on a :

$$\epsilon' = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \tau^{-2}}$$

$$\epsilon'' = \frac{\omega_p^2}{\omega^3 \tau}$$

et on montre finalement que :

$$\delta \epsilon \approx \left\{ -\beta_T p \left(\frac{\partial \epsilon'}{\partial p} \right)_T + i \left(\frac{\partial \epsilon''}{\partial T} \right)_p \right\} \delta T$$

où
$$p \left(\frac{\partial \epsilon'}{\partial p} \right)_T = \epsilon' - 1$$

et
$$\left(\frac{\partial \epsilon''}{\partial T} \right)_p = \tau \epsilon'' \left(\frac{\partial \tau^{-1}}{\partial T} \right)_p$$

A 5320 Å : $\varepsilon' = -12$ et $\varepsilon'' \approx 0,5$ (7)

De plus, $\beta_T = 5,7 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ et on obtient :

$$-\beta_T \ell \left(\frac{\partial \varepsilon'}{\partial \ell} \right)_T = 7,4 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$$

et

$$\left(\frac{\partial \varepsilon''}{\partial T} \right)_\ell = 5,6 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$$

Au chapitre IV (formule IV-22), on a pris ces deux quantités égales

$$\tilde{\alpha} = \varepsilon' \beta_T$$

ANNEXE B

a) Champ du plasmon de surface dans le métal

Au chapitre I, on a donné les champs réfléchis dans le prisme et transmis dans le diélectrique en configuration ATR de Kretschmann. Restait à connaître le champ dans le métal.

Reprenant les notations du chapitre I, on trouve, partant de (I-8), que :

$$\left| \frac{E_{mx}^{(1)}}{E_{mx}^{(2)}} \right| = e^{2\alpha_m d}$$

qui vaut ~ 150 si $\alpha_m \sim 200 \text{ \AA}^{-1}$ et $d \sim 500 \text{ \AA}$.

Le champ dans le métal est donc bien confiné à l'interface Ag-diélectrique.

Comparons à présent les champs dans le métal et dans le diélectrique. On a :

$$E_{mx}^{(1)} \approx E_d$$

ce qui fait, en $z = 0$:

$$\left| \frac{\vec{E}_m^{(1)}}{\vec{E}_d} \right| = \left| \frac{1 + (k_x/k_{mz})^2}{1 + (k_x/k_{dz})^2} \right|^{1/2} = \sqrt{\frac{-\epsilon_d}{\epsilon_m}}$$

Ce rapport vaut 0,4 à 0,53 μm pour un interface Ag/éthanol et 0,1 à 1,06 μm pour un interface Ag/air. Le champ dans le métal est donc plus faible que dans le diélectrique. L'intensité I du champ étant proportionnelle à $\sqrt{|\epsilon'|} |\vec{E}|^2$, on a aussi :

$$\frac{I_m}{I_d} = \sqrt{\frac{-\epsilon_d}{\epsilon_m}}$$

b) Champ d'une onde de volume évanescence dans le métal

On considère ici une onde incidente depuis l'air en polarisation p, sous un angle θ , sur une surface d'argent. On néglige l'influence de l'épaisseur finie du film d'Ag.

Notant \vec{E}_a son champ incident dans l'air et \vec{E}_m son champ transmis dans le métal, on a à l'interface :

$$\frac{E_{mx}}{E_{ax}} = 2 \left(1 + \frac{\epsilon_m \cos \theta}{\sqrt{\epsilon_m - \sin^2 \theta}} \right)^{-1}$$

et à 5320 Å, $\left| \frac{\vec{E}_m}{\vec{E}_a} \right|^2 = 0,23$ pour $\theta = 68^\circ$ (Chap. III)

et $\frac{E_m}{E_a}^2 = 0,31$ pour $\theta = 2,3^\circ$ (Chap. IV)

On peut aussi, connaissant ϵ_m'' , calculer la quantité η d'énergie absorbée par le métal, qui est égale à l'énergie qui n'est pas réfléchie.

$$\eta = \frac{|E_{a \text{ inc}}|^2 - |E_{a \text{ refl}}|^2}{|E_{a \text{ inc}}|^2}$$

Toujours à 5320 Å, $\epsilon_m'' = 0,5$ et on obtient :

$$\eta = \frac{|\cos \theta| (12 + 2 \sin^2 \theta)}{\sqrt{12 + \sin^2 \theta} (12 + \sin^2 \theta + 144 \cos^2 \theta)}$$

qui vaut 4.10^{-2} pour $\theta = 68^\circ$

et 2.10^{-2} pour $\theta = 2,3^\circ$

Ceci explique le faible taux de conjugaison obtenu lors de l'expérience 3 du chapitre III.

c) Champ rayonné dans le diélectrique par une polarisation source
du métal

On utilise toujours les notations du chapitre I(3, a). Résolvant (I-30) pour $\vec{P}_m^{(NL)} \neq 0$ et $\vec{P}_d^{(NL)} = 0$, on obtient à l'ordre 0 en $e^{-i k_m z}$:

$$E_{dx}^{(m)} = \frac{8 \pi k_d z (\epsilon_p k_m z - \epsilon_m k_p z)}{\Delta(\omega, k_x)} \left\{ \frac{P_{mx} k_m z - P_{mz} k_x}{k_m z - k_m z^{(s)}} \right\}$$

Cette formule ressemble beaucoup à (I-33) et c'est elle qui permet de remonter au taux de conjugaison de l'expérience 3 du chapitre III.

ANNEXE C

Plasmons de surface faiblement non linéaires

Nous traitons ici l'effet sur la relation de dispersion des PS d'un indice non linéaire du diélectrique dépendant de la distance à l'interface. C'est le cas pour un effet Kerr isotrope auto-induit ⁽⁸⁾ où la constante diélectrique peut s'écrire :

$$\epsilon_d = \epsilon_1 + \epsilon_2 e^{\mu z}$$

avec $\mu > 0$ et $\epsilon_2 \ll \epsilon_1$ (On notera $\epsilon_d = \epsilon$).

Nous considérons un interface Ag-diélectrique situé en $z = 0$, avec le diélectrique en $z < 0$. La présence du prisme ne modifierait en rien la nature de nos résultats.

Nous écrivons le champ électrique ainsi :

$$\vec{E}_m = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \frac{ik}{\alpha_m} \end{pmatrix} e^{ikx - \alpha_m z - i\omega t} + CC$$

$$E_d = a \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \frac{-ik}{\alpha} \end{pmatrix} e^{ikx + \alpha z - i\omega t} + b \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \frac{ik}{\alpha} \end{pmatrix} e^{ikx - \alpha z - i\omega t} + CC$$

où a , b et α sont des fonctions de z vérifiant :

$$\lim_{z \rightarrow -\infty} (a e^{\alpha z} + b e^{-\alpha z}) = 0$$

$$\text{et } \alpha(z) = \sqrt{k^2 - \epsilon(z)} \quad (\text{on prend } \omega/c = 1).$$

La condition de continuité en $z = 0$ s'écrit :

$$a(0) + b(0) = 1$$

$$\text{et } \varepsilon_m \alpha(0) + \varepsilon(0) \alpha_m (a(0) - b(0)) = 0$$

Pour résoudre ce problème et trouver a et b , on découpe le diélectrique en tranches d'épaisseur dz dans lesquelles a , b et α sont constants. Ecrivant la condition de continuité en $z + dz$, on obtient une équation qui une fois développée au premier ordre en dz devient (en z) :

$$0 = e^{\alpha z} (a \overset{\circ}{\alpha} z + \overset{\circ}{a}) + e^{-\alpha z} (-b \overset{\circ}{\alpha} z + \overset{\circ}{b})$$

$$\text{et } 0 = e^{\alpha z} a (\overset{\circ}{\alpha} z + \varepsilon^{-1} \overset{\circ}{\varepsilon} - \alpha^{-1} \overset{\circ}{\alpha} + a^{-1} \overset{\circ}{a}) - e^{-\alpha z} b (-\overset{\circ}{\alpha} z + \varepsilon^{-1} \overset{\circ}{\varepsilon} - \alpha^{-1} \overset{\circ}{\alpha} + b^{-1} \overset{\circ}{b})$$

Le point sur une fonction désigne ici sa dérivée par rapport à z .

On notera que cette équation sur a et b ne préjuge pas de la forme de $\varepsilon(z)$.

Rajoutant la condition en $z = -\infty$ et utilisant la forme de ε donnée plus haut, on trouve, au premier ordre en ε_2 :

$$a(z) = 1 - \frac{\varepsilon_2}{2} \left\{ \frac{\kappa \mu}{\mu + 2\alpha_\infty} + (e^{\mu z} - 1) \left(\frac{1}{\alpha_\infty \mu} + \kappa \right) \right\}$$

$$b(z) = \frac{\varepsilon_2}{2} \left\{ \frac{\kappa \mu}{\mu + 2\alpha_\infty} e^{(\mu + 2\alpha_\infty)z} \right\}$$

$$\text{où } \alpha_\infty = \alpha(-\infty) \quad \text{et} \quad \kappa = \frac{1}{2\alpha_\infty^2} + \frac{1}{\varepsilon_1}$$

Appliquant à cette solution la condition de continuité en $z = 0$, on obtient la nouvelle relation de dispersion des PS faiblement non linéaires :

$$k = k_0^{\text{PS}} + \frac{1}{2} \left(\frac{\epsilon_m \epsilon_1}{\epsilon_m + \epsilon_1} \right)^{3/2} \frac{2 \alpha_\infty}{\mu + 2 \alpha_\infty} \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1^2}$$

où k_0^{PS} est le vecteur d'onde des PS linéaires.

Dans le cas où l'effet *Kerr* est auto-induit, comme c'était le cas pour l'expérience du chapitre II (figure 11), $\mu = 2 \alpha_\infty$ et le facteur $\frac{2 \alpha_\infty}{\mu + 2 \alpha_\infty}$ vaut 1/2.

On voit donc que dans ce cas, l'effet sur la relation de dispersion est réduit de moitié par rapport à ce que l'on aurait avec

$$\epsilon = \epsilon_1 + \epsilon_2 \text{ constant (Cf. formule II-4).}$$

On aboutit au même résultat pour une non linéarité isotrope du métal ($\epsilon_m = \epsilon_{m1} + \epsilon_{m2} e^{-\mu_m z}$).

Il faut remarquer que la répartition spatiale de l'énergie du plasmon est modifiée par la présence de la non linéarité dépendant de z . Le plasmon a tendance à se "focaliser" près de l'interface. Pour de fortes non linéarités, cela modifie beaucoup la relation de dispersion des PS⁽⁹⁻¹⁰⁾.

REFERENCES DES ANNEXES

- 1) J.A. Mc KAY et J.A. RAYNE :
Phys. rev. B, 13, 673 (76)
- 2) R.T. BEACH et R.W. CHRISTY :
Phys. Rev. B, 16, 5277 (77)
- 3) G.R. PARKINS, W.E. LAWRENCE et R.W. CHRISTY :
Phys. rev. B, 23, 6408 (81).
- 4) T. HOLSTEIN :
Ann. Physics : 29, 410 (64).
- 5) N. KOUMVAKALIS, C.S. LEE et M. BASS :
IEEE J.Q.E., 19, 1482 (83)
- 6) S.P. CHERNOV et A.V. SHEPELEV :
Moscou-Univ-Phys-Bull, 38, 47 (83).
- 7) P.B. JOHNSON et R.W. CHRISTY :
Phys. rev. B, 6, 4370 (72).
- 8) V.M. AGRANOVICH et V.Y. CHERNYAK :
Sol. Stat. Com., 44, 1309 (82)
- 9) N.N. AKHMEDIEV :
Sov. Phys. JETP, 57, 1111 (83).
- 10) M.Y. YU :
Phys. Rev. A, 28, 1855 (83).